

Исследование $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок на различных стадиях роста методом рассеяния ионов средних энергий

© В.В. Афросимов, Р.Н. Ильин, С.Ф. Карманенко*, В.И. Сахаров, А.А. Семенов*,
И.Т. Серенков, Д.В. Яновский

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

* Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет,
197376 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: R.Ilin@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 16 сентября 1998 г.)

Начальные стадии образования и рост пленок иттрий-бариевого купрата в процессе магнетронного распыления керамической мишени были исследованы посредством сочетания диагностик рассеяния ионов средних энергий (РИСЭ) и сканирующей микроскопии. Были установлены существенные различия в механизмах роста пленок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ на MgO и на подложках со структурой перовскита — SrTiO_3 и LaAlO_3 для температуры осаждения $700\text{--}780^\circ\text{C}$ и давления смеси газов ($\text{Ar} + \text{O}_2$) ~ 70 Па. Моделирование спектров РИСЭ (ионы H^+ или He^+ с начальными энергиями $150\text{--}250$ keV) и сравнение с экспериментальными данными позволило установить, что в первом случае пленка формируется из пирамидальных островков, а во втором — происходит двумерный послойный рост, начиная практически с первого монослоя. Для островкового механизма роста метод РИСЭ позволил определить степень покрытия поверхности подложки и показать, что наряду с фазой $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ происходит образование эпитаксиальных зародышей фазы Cu_2O . После первого, начального этапа формирования пленки выделяется второй этап — начало регулярного роста при приведенных толщинах $7\text{--}15$ nm. Для него характерно практически полное покрытие подложки и стабильный состав. Третий этап — регулярный (по-видимому, спиральный) рост — наблюдался при толщинах более 100 nm. На этом этапе качество структуры пленки по толщине и на поверхности несколько уступало качеству монокристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ и не зависело от типа подложки.

Основным материалом современной криоэлектроники является высокотемпературный сверхпроводник $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO) в форме тонких пленок на различных диэлектрических подложках [1]. По этой причине исследования начальных и последующих стадий роста тонких пленок YBCO представляют не только серьезный научный, но и практический интерес. Исследования характера роста пленок на различных подложках показали, что при хорошем согласовании постоянных решеток пленок и подложки начало роста происходит послойно, а при значительном несоответствии образуются островки [2,3]; при этом характер роста может меняться в зависимости от температуры подложки [3]. На самой ранней стадии роста было обнаружено образование зародышей посторонних фаз, концентрация которых менялась немонотонно [4]. При дальнейшем росте пленок во многих случаях имел место спиральный характер роста [5].

В большинстве случаев особенности структуры пленок исследовались методами электронной и атомно-силовой микроскопии. Эти методы дают подробную информацию об отдельных малых участках пленки с размерами $10\text{--}1000$ nm, но не позволяют оценить макроскопические участки пленки в целом. Обобщенную по площади несколько mm^2 информацию о начальных стадиях роста и о профиле структуры пленок можно получить методом рассеяния ионов средних энергий (РИСЭ) [6,7]. В отличие от традиционного метода резерфордского обратного рассеяния, использование ионов с энергией порядка 10^5 eV и электростатических

анализаторов дает большее разрешение по глубине и, как показано в [6], позволяет исследовать особенности роста пленок при толщинах до нескольких нанометров.

Задачей данной работы является изучение характера роста и совершенства структуры YBCO пленок, начиная от их зарождения до достижения толщины в доли микрометра в зависимости от типа подложки и ее температуры в момент роста с использованием диагностик РИСЭ и сканирующей электронной микроскопии.

1. Методика эксперимента

Пленки YBCO выращивались в процессе магнетронного распыления керамической мишени стехиометрического состава в атмосфере $\text{Ar}\text{--}\text{O}_2$ при давлении ~ 70 Па и температуре подложек $700\text{--}780^\circ\text{C}$ [8]. В качестве подложек использовались пластины монокристаллов MgO , LaAlO_3 (LAO), SrTiO_3 (STO) с ориентацией (100) и монокристаллы MgO , покрытые слоем $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ с $x \approx 0.3$ (BSTO). Были изготовлены две группы пленок: сверхтонкие — толщиной менее 20 nm и тонкие — толщиной $100\text{--}450$ nm.

Исследование пленок методом РИСЭ выполнялись на установке, описанной ранее в работе [9]. Производился анализ энергетического распределения ионов H^+ или He^+ с начальными энергиями $100\text{--}200$ keV, рассеянных на угол Θ после взаимодействия первичного пучка с образцом. Для анализа применялся либо электростатический анализатор (ЭСА) с разрешением $\Delta E/E = 0.005$

и $\Theta = 120^\circ$, либо полупроводниковый детектор с $\Delta E = 4 \text{ keV}$ и $\Theta = 150^\circ$ в режимах неориентированного пучка и каналирования вдоль оси [001] подложки. Для указанных режимов измерялись зависимости выхода отраженных ионов от их энергии — $Y_r(E)$ и $Y_c(E)$ соответственно. Определяемое отношение $\chi(E) = Y_c(E)/Y_r(E)$, называемое относительным выходом, характеризовало совершенство кристаллической решетки исследованных образцов.

Для тонких пленок определялись температура перехода T_c в сверхпроводящее состояние на основе четырех-контактных резистивных измерений.

2. Моделирование спектров РИСЭ

Толщина пленок, их состав, а также степень покрытия пленкой подложки определялись методом вариации параметров для достижения наилучшего согласия между расчетными и экспериментальными спектрами [10]. Данные по тормозным сечениям и страгглингу выбирались на основе анализа большого числа экспериментальных и расчетных работ. Толщина пленки h вычислялась как общее число атомов соответствующего состава на 1 cm^2 и преобразовывалась в линейный размер (nm) в предположении идеальной упаковки.

При исследовании сверхтонких пленок, когда влияние энергетического страгглинга на форму заднего (низкоэнергетического) фронта спектра мало, возможна оценка неоднородности толщины пленки, что особенно важно при рассмотрении островкового роста. Для строгого описания спектра в этом случае необходимо определить форму островков и распределение их по размерам [11]. Для достижения подобного рода экспериментальной информации необходима статистическая обработка больших массивов результатов исследования поверхности методами туннельной и атомно-силовой микроскопии. Применение данных методов исследования, например в работах [12,13], позволило определить, что зародыши $YBCO$ фазы на подложке LAO и MgO могут принимать различную форму — в зависимости от режимов осаждения — от плоского моноатомного диска до ступенчатой спирали (винтовая дислокация). Вместе с тем получить распределение зародышей по форме и размерам для протяженных поверхностей очень сложно, поэтому в данной работе применялась приведенная далее процедура, основанная на нормальном распределении.

Для описания рельефа поверхности пленок и формы образований при островковом характере роста задавалась функция распределения площадей поверхности по толщине в виде

$$f(X) = \frac{dS}{dX} = (2\pi)^{-1/2} \sigma^{-1} \times \exp\left(-\frac{(X - X_0)^2}{2\sigma^2}\right) \left[0.5 + G\left(\frac{X_0}{\sigma}\right)\right]^{-1}, \quad (1)$$

где dS — доля площади поверхности, соответствующая участкам пленки с толщинами от X до $X + dX$, X_0 и

σ — варьируемые параметры распределения, функция G определяется следующим образом:

$$G(z) = (2\pi)^{-1/2} \int_0^z \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right) dx. \quad (2)$$

Исходя из распределения (1), можно определить среднюю толщину пленки h на участках подложки, покрытых пленкой,

$$h = \int_0^\infty X f(X) dX = X_0 + (2\pi)^{-1/2} \sigma \times \exp\left(-\frac{X_0^2}{2\sigma^2}\right) \left[0.5 + G\left(\frac{X_0}{\sigma}\right)\right]^{-1}. \quad (3)$$

Параметры X_0 и σ подбирались при моделировании участка спектра $Y_r(E)$, соответствовавшего пленке, степень покрытия пленкой подложки определялась по соотношению величин сигналов пленки и подложки в том же спектре. Далее для описания пленок использовались значения толщины h , полученной по (3), и разброса толщин σ . Отметим, что при неполном покрытии пленкой подложки в спектре появляется сигнал, соответствующий "открытой" подложке, который также при правильном выборе параметров должен быть описан модельной кривой.

При исследовании пленок толщиной более 100 nm использование метода РИСЭ в сочетании с каналированием позволило оценить скорость деканалирования зондирующего пучка с ростом глубины его проникновения $\chi(\tau)$. Процедура определения $\chi(\tau)$ по экспериментальным спектрам, позволяющая исследовать не только пленку, но и интерфейс, описана в [14]. В данной работе для большинства пленок была использована упрощенная методика. При моделировании соответствующего пленке участка спектра в режиме каналирования $Y_c(E)$ для каждого значения τ полагалось $Y_c(\tau) = Y_r(\tau)\chi(\tau)$. Как будет показано в разделе 3.2, зависимость скорости деканалирования от глубины имеет вид

$$\chi(\tau) = \chi_0 + D\tau. \quad (4)$$

Параметры χ_0 и D , характеризующие деканалирование у поверхности и в объеме, являются варьируемыми параметрами.

Сопоставление энергетических ширин тонких пленок в спектрах $Y_c(E)$ и $Y_r(E)$ позволило оценить отношение тормозных способностей в канале ε_c и вне его — ε_r — путем введения для каналового спектра эффективной толщины $h' = \beta h$ ($\beta < 1$). Коэффициент β зависел от отношения $\alpha = \varepsilon_c/\varepsilon_r$ и хода функций $\varepsilon(E)$ и являлся варьируемым параметром.

3. Обсуждение результатов

3.1. Сверхтонкие пленки. Для исследования начальных этапов роста были изготовлены пять партий пленок. Пленки в каждой партии различались видом

Таблица 1. Параметры сверхтонких пленок

№	Подложка	t_d , min	t_s , °C	X_0 , 10^{15} at/cm ²	σ , 10^{15} at/cm ²	h , 10^{15} at/cm ²	h , nm	C , %	hC , nm,	hC/t_d , nm/min	χ_{\min}	Примечания
1	MgO	5	700	54	50	67	8.9	49	4.4	0.90	1(Cu-0.8)	
2	MgO	5	760	12	30	29	3.9	33	1.3	0.26	1(Cu-0.6)	Избыток Cu
3	MgO	15	780	36	50	56	7.5	19	1.4	0.10	0.9(Cu-0.55)	Избыток Cu
4	MgO	30	760	16	160	134	18	36	6.5	0.22	0.95	
5	MgO	60	760	110	120	148	19	66	13.0	0.22	0.8	
6	Ba _x Sr _{1-x} TiO ₃	5	700	25	20	29	3.9	90	3.5	0.7	~ 0.4	
7	Ba _x Sr _{1-x} TiO ₃	5	760	—	—	7.5	1.0	67	0.67	0.13	0.65	Дефицит Cu
8	SrTiO ₃	15	780	24	10	24	3.2	75	2.4	0.16	0.55(0.4)*	
9	SrTiO ₃	30	760	—	—	60	8.0	90	7.2	0.24	0.52(0.3)*	
10	LaAlO ₃	30	760	—	—	55	7.3	100	7.3	0.24	0.27	
11	Ba _x Sr _{1-x} TiO ₃	30	760	—	—	52	6.9	100	6.9	0.23	0.12	
12	LaAlO ₃	60	760	—	—	110	14.6	100	14.6	0.24	0.18	
13	Ba _x Sr _{1-x} TiO ₃	60	760	—	—	110	14.6	100	14.6	0.24	0.17	

Примечание. * С поправкой на дефектность подложки.

подложки, но изготавливались одновременно, т.е. имели одинаковое время осаждения $t_d = 5, 15, 30$ и 60 min и температуру подложки $t_s = 700, 760$ и 780°C .

Количественные характеристики, описывающие свойства сверхтонких пленок, приведены в табл. 1. Это температура t_s , материал подложки и время осаждения t_d ; параметры распределения, соответствующие формуле (1) — X_0 и σ ; толщина пленки h ; степень покрытия C и минимальный выход χ_{\min} , определенные из эксперимента; приведенная толщина hC , т.е. толщина при равномерном распределении конденсированных атомов по поверхности подложки; скорость роста hC/t_d .

На рис. 1 и 2 приведены спектры РИСЭ для пленок с $t_s = 15$ min на монокристаллах MgO и STO соответственно (№ 3 и 8 в табл. 1). Спектры $Y_c(E)$ и $Y_r(E)$ получены с помощью ЭСА для ионов He^+ с энергией 190 keV. Форма пиков катионных компонентов существенно зависит от типа подложки. На подложке MgO, у которой рассогласование постоянных решетки с YBCO пленкой составляет 8.3% [15], эти пики имеют затянутый задний (низкоэнергетичный) фронт, и при моделировании необходимо задавать величину разброса σ , близкой к величине толщины пленки. Такая форма спектра соответствует процессу роста по механизму Фольмера-Вебера [12] — трехмерных, ступенчатых островков. Для STO подложки, обладающей хорошим согласованием постоянных решетки (~ 1.5% [15]), форма пика Ba почти симметрична и разброс σ — если его можно обнаружить — значительно меньше h и близок по величине к параметру решетки c . В данном случае имеет место послонный рост, т.е. реализуется двумерный механизм Франка-ван дер Мерве. Поверхность подложек у рассматриваемых пленок покрыта неполностью, что хорошо заметно на MgO подложке. О неполном покрытии свидетельствует относительно малая амплитуда сигнала пленки по сравнению с сигналом подложки, а также тот факт, что сигнал подложки в спектре начинается с точки энергетической шкалы, соответствующей

открытой подложке. На рис. 1 приведены модельные спектры, соответствующие полному и неполному (19%) покрытию, иллюстрирующие способ определения степени покрытия.

Микрофотографии пленок № 4, 9 и 10 (табл. 1), полученные в сканирующем электронном микроскопе, приведены на рис. 3, а, 4 и 5. По микрофотографии островковой структуры YBCO/MgO проводилась оценка доли поверхности, занятой пленочными островками. Для этой цели использовался программный пакет Adobe Photoshop. На рис. 3, б представлена часть поверхности структуры YBCO/MgO, построенная с помощью указанной компьютерной программы по соответствующей микрофотографии. По приведенному изображению проводилось определение доли занятой поверхности, которая составила 47%. Эта величина удовлетворительно согласуется с результатом, полученным методом РИСЭ, — 36% с учетом различий в методиках оценки.

На рис. 4 показана микрофотография YBCO пленки толщиной ~ 8 nm на подложке STO (№ 9 в табл. 1). Наличие множественных царапин являлось наглядным подтверждением дефектности поверхности подложки. На данной микрофотографии видно, что светлые точки и линии занимают менее 1% и располагаются вдоль макродефектов поверхности, т.е. царапины декорируются кристаллитами примесных фаз. На рис. 5 представлена микрофотография поверхности пленки YBCO, выращенной в том же технологическом цикле на подложке LAO, с устранным нарушенным слоем на поверхности. В данной пленке YBCO также присутствуют примесные кристаллиты, но они распределены хаотично и с меньшей концентрацией. Морфология поверхности тонких пленок YBCO на перовскитных подложках высокого качества была практически идентичной — начиная с толщин порядка одного монослоя пленка была сплошной и однородной.

Сравнение спектров и полученных при их обработке параметров позволяет разделить пленки на две груп-

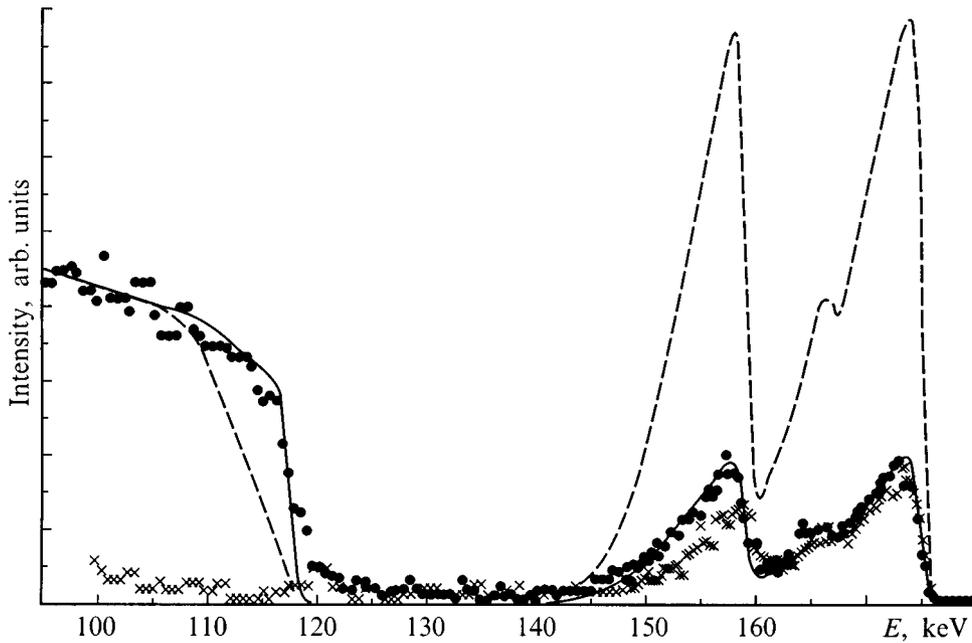


Рис. 1. Спектры РИСЭ пленки № 3 (подложка MgO). Точки и крестики — эксперимент для режима случайной ориентации и канализования соответственно; сплошная кривая — модельный расчет; штриховая кривая — расчет в предположении 100% покрытия площади подложки.

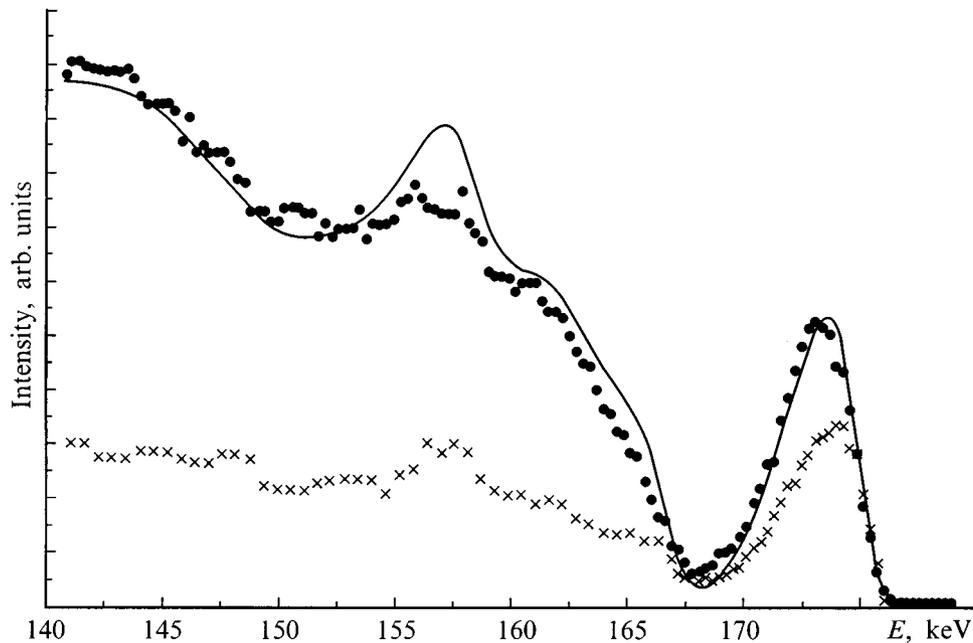


Рис. 2. Спектры РИСЭ пленки № 8 (подложка STO). Обозначения те же, что на рис. 1.

пы: пленки на MgO подложке с большим рассогласованием параметров решеток и пленки на подложках со структурой перовскита, которые имеют малое рассогласование с решеткой $YBaCuO$ (STO, BSTO и LAO).

3.1.1. Подложка MgO. Пленки YBCO на MgO подложке, полученные в данной работе, характеризуются следующими особенностями. Островки полностью по-

крывают подложку, начиная с усредненной толщины пленки ~ 20 nm. Неоднородность их толщины существенно превышает постоянную c и примерно равна их средней толщине, что проявляется в сильной затяжке задних (низкоэнергетичных) фронтов. Островковый характер роста при неполном покрытии MgO подложек обнаружен для всех сверхтонких пленок, что подтверж-

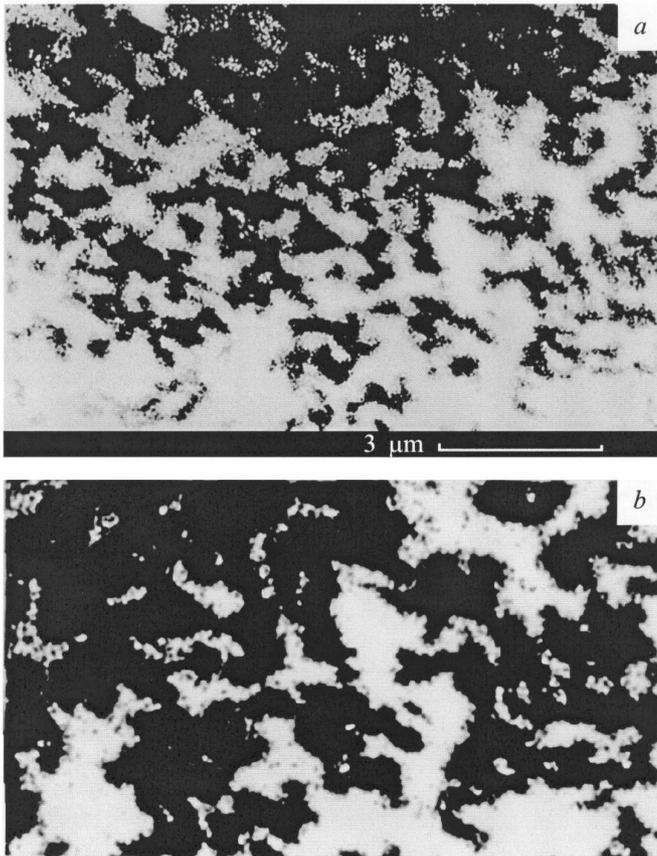


Рис. 3. Микрофотография (а) и компьютерная обработка микрофотография (b) пленки № 4 (подложка MgO).

дается как спектрами РИСЭ, так и микрофотографиями (рис. 3, а, b). Для пленок тоньше 9 нм характерен избыток меди, для более толстых — состав близок к стехиометрическому. Почти на всех пленках, кроме самой толстой (№ 5), каналирование на Y–Ba подрешетке практически отсутствует, но в пленках № 1–3 заметно для Cu–O подрешетки ($\chi < 0.8$, табл. 1), что свидетельствует о наличии упорядоченной структуры, содержащей только Cu катионы. Этот факт в сочетании со значительным избытком меди в указанных пленках позволяет считать, что на начальном этапе роста наряду с другими фазами появляются эпитаксиальные зародыши Cu_2O фазы. (Cu_2O имеет кубическую решетку с постоянной $a = 0.4261$ нм, что очень близко к $a = 0.4213$ нм для MgO). Образование зародышей Cu_2O ранее наблюдалось методом дифракции рентгеновских лучей в работе [16].

Сравнение пленок № 1, 2 и 3 позволяет проследить влияние температуры подложки на особенности роста. С повышением температуры уменьшается степень покрытия, что согласуется с результатами работы [17], и вследствие уменьшения пересыщения убывает скорость роста, а также возрастает избыток меди. Если считать, что пленка состоит только из Cu_2O и $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, то из анализа спектров следует, что при повышении температуры с 760 до 780°C доля Cu_2O возрастает с 10

до 20 атомных процентов. Данные по каналированию свидетельствуют о том, что Cu_2O фаза может составлять до половины поверхности подложки, покрытой пленкой.

Анализ пленок, полученных при одной температуре подложки (№ 2, 4 и 5) показывает, что с увеличением времени осаждения пропорционально возрастает приведенная толщина hC , в то же время h возрастает до толщин $\sim 15\text{--}20$ нм; затем при практически неизменной толщине увеличивается степень покрытия подложки, т. е. характер роста меняется. Это соответствует наблюдениям, сделанным в работах [12,17,18], в которых было показано, что при толщине пленки не менее 10с происходит коалесценция островков и переход от роста островков к росту пленки по спиральному механизму: формируются террасы с высотой ориентировочно 1.2 нм с центром на винтовой дислокации.

3.1.2. Подложки со структурой перовскита. Пленки на подложках с малым рассогласованием обладают близкими свойствами и заметно отличаются от пленок на MgO. Разброс толщин гораздо меньше, чем на MgO, и заметно меньше самой толщины, что свидетельствует

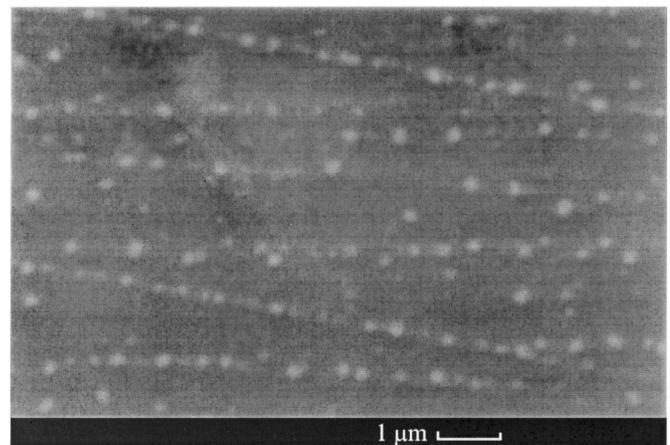


Рис. 4. Микрофотография пленки № 9 (подложка STO).

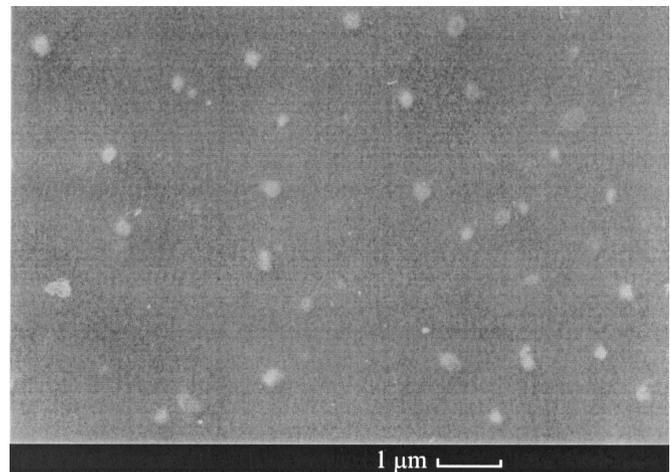


Рис. 5. Микрофотография пленки № 10 (подложка LAO).

Таблица 2. Параметры тонких пленок

№	Подложка	t_d , hour	t_s , °C	T_c , K	h , 10^{15} at/cm ²	h , nm	h/t_d , nm/min	D , 10^{-19} cm ² /at	χ_0	χ_{min}
14	LaAlO ₃	2	700	93	800	106	0.88	2.1	0.09	0.13
15	MgO	4	700	93	1230	165	0.69	2.0	0.033	0.10
16	NdGaO ₃	10	760	92	1350	180	0.3	1.8	0.07	0.15
17	LaAlO ₃	4	700	93	1600	215	0.9	2.0	0.02	0.10
18	LaAlO ₃	6	700	94	2300	310	0.86	1.9	0.09	0.17
19	LaAlO ₃	11	700	93	3500	470	0.71	2.0	0.04	0.08

о послойном характере роста. Степень покрытия для пленок, полученных в исходных условиях, больше, чем на MgO подложке, и соответствует практически полному покрытию при t_d более 15 min для всех применявшихся температур. Во всех пленках обнаружено каналирование на Ba–Y подрешетке. Большинство пленок имеет состав, близкий к стехиометрическому, хотя в некоторых пленках (№ 7 и 8) существует дефицит меди, что, в частности, следует из отклонения экспериментального спектра от рассчитанного в предположении стехиометрического состава.

Влияние температуры подложки при осаждении пленки видно из сравнения пленок № 6 и 7, а также 8 и 9. Понижение температуры приводило к увеличению скорости роста и степени покрытия.

При сравнении характеристик пленок следует выделить самую тонкую пленку — № 7. Средняя толщина ее на участках, закрывающих подложку, составляет 0.94 ± 0.8 nm, что меньше c — постоянной решетки YBCO, — т.е. на ней должны существовать зародыши, имеющие высоту менее c . В работе [6] для пленки с $hc = 0.4$ nm толщина также была меньше величины c . Кроме малой толщины и невысокой скорости роста, эту пленку характеризует дефицит меди. Можно полагать, что эта пленка находится на этапе образования зародышей, в том числе посторонних фаз, причем образование Cu_2O сильно подавлено из-за различия в постоянных решетки. По мере дальнейшего роста покрытие становится полным, разброс толщины сокращается, состав становится близким к стехиометрическому и устанавливается регулярный послойный рост пленки.

3.2. Тонкие пленки. Тонкие YBCO пленки, исследованные в работе, имели толщину от 100 до 470 nm. Осаждение на подложки MgO и LAO проводилось при температуре 700°C, а на подложку NdGaO₂ — при 760°C. В табл. 2 приведены сведения о материале подложки, температуре и длительности процесса осаждения — t_s , t_d , средней скорости роста и толщине пленок, а также характеристики каналирования: минимальный выход, измеренный после поверхностного пика и параметры моделирования — χ_0 и D , входящие в формулу (4). Представлены также данные о температуре перехода в сверхпроводящее состояние — T_c .

На рис. 6 и 7 приведены спектры в режимах каналирования — $Y_c(E)$, и произвольной ориентации — $Y_r(E)$ и их отношение $\chi(E)$, измеренные и полученные при

моделировании для пленок на MgO и LAO (№ 15 и 14 соответственно). Энергия первичных протонов составляла 230 keV, угол рассеяния Θ — 150°. Зависимости $\chi(E)$ для области, соответствующей основной части пленки, в обоих случаях близки к линейным. С учетом слабой зависимости тормозных способностей от энергии, было сделано предположение о линейной зависимости в (4). Удовлетворительное согласие модельного расчета с экспериментом подтверждает такую зависимость.

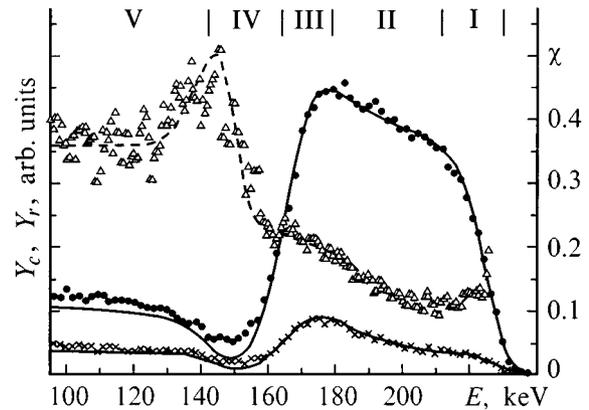


Рис. 6. Спектры РИСЭ и функция $\chi(E)$ для пленки № 15 (подложка MgO). Точки и крестики — эксперимент для режима случайной ориентации и каналирования соответственно; треугольники — отношения экспериментальных значений Y_c/Y_r ; сплошные кривые — расчеты спектров, штриховая — модельная функция $\chi(E)$. I–V — области спектра (см. текст).

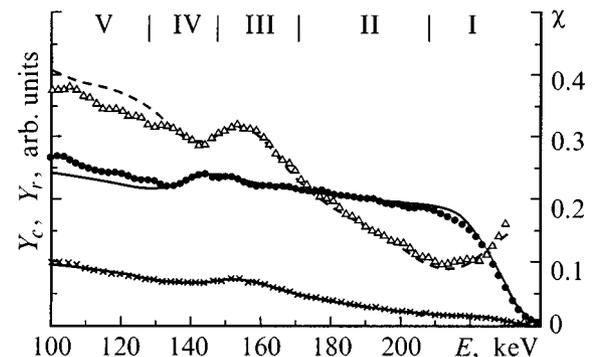


Рис. 7. Спектры РИСЭ и функция $\chi(E)$ для пленки № 17 (подложка LAO). Обозначения те же, что на рис. 6.

Для пленок на подложке, состоящей из легких компонентов, когда низкоэнергетичный край спектра пленки хорошо отделен от начала спектра подложки, возможно более подробное исследование области интерфейса. Такое исследование с помощью методики, развитой ранее в работе [14], было выполнено для YBCO пленки № 15 на MgO подложке. На спектрах $Y_c(E)$ (рис. 6 и 7) можно различить пять областей. Область I соответствует поверхностному пику. Область II, в которой зависимость $\chi(E)$ приближается к линейной, соответствует объему пленки и характеризуется практически постоянной скоростью деканалирования D (4). Область III соответствует слоям пленки, прилегающим к интерфейсу, где возможно появление дислокаций несоответствия. Для этой области оценки плотности дислокаций несоответствия, сопровождающих когерентный рост, дали величину $n_d \approx 7.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{cm}^2$ при величине фактора деканалирования $\sigma_d \approx 0.66 \text{ nm}$ [14,19]. Полученное значение n_d значительно ниже, чем следует из оценок на основе несоответствия параметров решеток ($2 \cdot 10^6 \text{ cm}^2/\text{cm}^2$), и свидетельствует о преимущественно текстурированном росте без дислокаций несоответствия. Область IV соответствует слоям подложки, прилегающим к интерфейсу, область V — основной части подложки.

Для остальных пленок, в которых разрешение областей пленки и подложки в спектре затруднено, осуществлялось моделирование только области II методом, описанным в разделе 2. Из сопоставления спектров в режимах неориентированного и каналирующего пучков получено отношение α тормозных способностей в канале и вне его для протонов с энергией 230 keV, составившее 0.83 ± 0.06 .

Полученные при моделировании параметры χ_0 , так же как и значения χ_{\min} , определенные из эксперимента на участке сразу же после поверхностного пика на границе областей I и II, в значительной мере определяются наличием выходящих на поверхность посторонних неориентированных фаз и разориентацией кристаллитов [19]. Параметр D характеризует скорость деканалирования по толщине пленки. При падении пучка нормально к поверхности величина D зависит от концентрации таких дефектов, как дислокации, имеющие направление и вектор Бюргера непараллельные пучку; границы зерен: точечные дефекты и дефекты упаковки, в частности, так называемые 2-4-7 и 2-4-8 структуры [20].

О типах дефектов можно судить по энергетической зависимости скорости деканалирования [19]. Так, для точечных дефектов это $1/E$, для дислокаций — $E^{1/2}$, а для дефектов упаковки такая зависимость отсутствует. Для пленки № 15 были получены значения D при различных энергиях зондирующих протонов. Оказалось, что при 96, 127, 181 и 230 keV $D = 2.2 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{atom}$, т.е. скорость деканалирования практически от энергии не зависит, что свидетельствует в пользу преобладания дефектов типа 2-4-7. Строго говоря, эти дефекты не являются дефектами упаковки, так как в них в плоскости дефекта не появляется новых цепочек атомов, а

происходит лишь изменение вида цепочки, т.е. Y–Ba₂ цепочки продолжают О₂ цепочкой и наоборот. Деканалирование на таких дефектах требует дополнительной информации. Из-за отсутствия дополнительной информации о типах дефектов в исследованных пленках оценки концентрации дефектов в объеме пленок не проводились. Полученные параметры D и χ_{\min} могут быть использованы для сравнения качества пленки с качеством хороших монокристаллов. Согласно [9], в YBCO монокристаллах $D = 7 \cdot 10^{20} \text{ cm}^2/\text{atom}$, $\chi_0 = 0.03$ и измеренная величина $\chi_{\min} = 0.097$. Данные, приведенные в табл. 2, показывают, что почти все пленки имеют близкие значения D независимо от типа подложки. Такое сближение свойств, по-видимому, связано с тем, что пленки на разных подложках растут по одному механизму спирального роста [5]. Скорости роста тонких пленок близки к скоростям роста сверхтонких пленок.

В заключение можно отметить следующие результаты. В работе развит метод анализа структуры и состава тонких пленок, основанный на измерении и моделировании энергоспектров ионов средних энергий, рассеянных на большие углы (РИСЭ), позволяющий получать обобщенную по площади порядка mm^2 информацию о характере роста сверхтонких (до 15 nm) пленок, степени дефектности по толщине тонких (до 500 nm) пленок и дефектах в области интерфейса для пленок тяжелых элементов на легких подложках.

Этим методом в сочетании со сканирующей электронной микроскопией исследованы YBCO пленки на MgO, SrTiO₃, Ba_xSr_{1-x}TiO₃ и LaAlO₃ подложках на разных этапах роста. На начальных этапах важна степень согласования постоянных решетки пленки и подложки. Различались три этапа роста. Первый этап при введенных толщинах до 4 nm — зародышеобразование, характеризуемое неполным покрытием подложки, нестабильным составом (примесь Cu₂O на MgO и дефицит Cu на Ba_xSr_{1-x}TiO₃), разбросом толщин, сравнимым с их величинами. Второй — начало регулярного островкового на MgO и послойного на подложках с хорошим согласованием роста — наблюдался при введенных толщинах 7–15 nm. Для него характерно практически полное покрытие подложки и стабильный состав. Третий — регулярный, по-видимому спиральный, рост наблюдался при толщинах более 100 nm. При нем состав был близок к стехиометрическому, а качество структуры пленки по толщине и на поверхности несколько уступало качеству монокристаллов YBCO и не зависело от типа подложки.

Работа выполнена в рамках проекта № 98055 "Интерфейс-2" государственной программы по исследованию высокотемпературной сверхпроводимости.

Список литературы

- [1] Z.-Y. Shen. High temperature superconducting microwave circuits. Artech house. Nortwood, MA (1994). 420 p.
- [2] X.-Y. Sheng, D.H. Lowndess, S. Zhu, J.D. Budai, R.J. Warmack. Phys. Rev. **B45**, 13, 7584 (1992).

- [3] M. Eсе, E.G. Gonzalez, H.-U. Habermeir, B. Oral. *J. Appl. Phys.* **77**, 4, 1646 (1995).
- [4] Е.К. Гольман, В.И. Гольдрин, Д.А. Плоткин, С.В. Разумов. *Письма в ЖТФ* **22**, 22, 82 (1996).
- [5] D.G. Schlom, D. Anselmetti, J.G. Bednorz, R.F. Broom, A. Catana, T. Frey, Ch. Gerber, H.-J. Güntherodt, H.P. Lang, J. Mannhart. *Zs. Phys.* **B65**, 2, 163 (1992).
- [6] D. Hüttner, U. Günther, O. Meyer, J. Reiner, G. Linker. *Appl. Phys. Lett.* **65**, 22, 2863 (1994).
- [7] В.В. Афросимов, Г.О. Дзюба, Р.Н. Ильин, И.Е. Лещенко, М.Н. Панов, В.И. Сахаров, И.Т. Серенков, А.В. Суворов, В.В. Третьяков. *СХФТ* **4**, 1767 (1991).
- [8] S.F. Karmanenko, M.V. Belousov, V.Yu. Davydov, R.A. Chakalov, G.O. Dzijuba, R.N. Il'in, et al. *Supercond. Sci. Technol.* **6**, 1, 23 (1993).
- [9] В.В. Афросимов, Г.О. Дзюба, Р.Н. Ильин, М.Н. Панов, В.И. Сахаров, И.Т. Серенков, Е.А. Ганза. *ЖТФ* **66**, 12, 76 (1996).
- [10] W.K. Chu, J.W. Meyer, M.A. Nicolett. *Backscattering Spectrometry*. Academic Press, N. Y. (1978). 380 p.
- [11] M. Zinke-Allmang. *Nucl. Instr. and Meth.* **B64**, 1, 113 (1992).
- [12] N. Savvides, A. Katsarov. *Physica* **C226**, 1, 23 (1994).
- [13] F.J.B. Stork, K.A. Beall, A. Roshko, D.C. DeGroot, D.A. Rudman, R.H. Ono, J. Krupka. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* **7**, 2, 1921 (1997).
- [14] В.В. Афросимов, Р.Н. Ильин, С.Ф. Карманенко, М.Н. Панов, В.И. Сахаров, И.Т. Серенков. *Поверхность* **8**, 71 (1997).
- [15] R. Schulz, M. Simoneau, J. Lanteigne. *Physica* **C233**, 1, 113 (1994).
- [16] Z. Han, T.I. Selinoder, V. Helmersson. *J. Appl. Phys.* **75**. 2020 (1994).
- [17] S. Zhu, D.H. Lowndes, B.C. Chakoumakos, S.J. Pennycook, X-Y. Zheng, R.J. Warmack. *Appl. Phys. Lett.* **62**, 25, 3363 (1993).
- [18] J.R. Sheats, P. Merchant. *Appl. Phys. Lett.* **62**, 1, 99 (1993).
- [19] L.C. Feldman, J.W. Mayer, S.R. Picraux. *Materials Analysis by Ion Channeling*. Academic Press, N. Y. (1992). 300 p.
- [20] R. Ramesh, D.M. Hwang, T.S. Ravi, A. Inam, X.D. Wu, T. Venkatesan. *Physica* **C171**, 1-2, 14 (1990).