## Рост сверхтонких $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок на подложке SrTiO<sub>3</sub>

© Е.К. Гольман\*, Р.Н. Ильин, Д.А. Плоткин\*, С.В. Разумов\*, В.И. Сахаров, И.Т. Серенков

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.llin@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 24 июня 1999 г.)

Рост сверхтонких (1.7–7.3 nm) пленок YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> на подложке SrTiO<sub>3</sub> (100) исследован методом рассеяния ионов средних энергий. Обнаружено, что рост островков происходил как по двумерной, так и по трехмерной модели и был критичен к изменениям условий роста.

Электронные приборы, использующие высокотемпературные сверхпроводники, обычно содержат многослойные структуры, электрические свойства которых в значительной мере зависят от совершенства границ раздела между слоями. Поскольку формирование границ раздела происходит на начальном этапе образования каждого пленочного слоя, исследование этого начального этапа и определение оптимальных технологических условий его проведения является актуальной задачей.

Начальный этап образования пленки  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) — зародышеобразование — характеризуется появлением островков различных размеров и состава [1,2], причем этот рост может носить автоколебательный характер [3]. Исследования методами атомносиловой микроскопии [2] и рассеяния ионов средних энергий [4,5] показали, что неоднородность островков по высоте и дальнейший переход к росту сплошного слоя определяется условиями роста и согласованием кристаллических решеток пленки и подложки. При этом, как показали наши предварительные исследования [6], при росте пленки YBCO на подложке SrTiO<sub>3</sub> (STO), хорошо согласующейся по структуре с YBCO, послойный рост имеет место при покрытии пленкой от ~ 40% площади подложки и выше.

В данной работе рассматривается начальный этап роста пленок YBCO на подложке STO и влияние технологических режимов на реализуемый тип роста пленки.

Пленки были изготовлены на двух различных установках в различных режимах. Температура держателя подложек в различных установках была различной. Для пленок № 1,3,5, изготовленных на установке Leybold Z-400, она поддерживалась на уровне 806°С (режим I). Пленки № 2,4,6, изготовленные

на другой установке, осаждались при температуре держателя подложек 880°С (режим II). Режимы осаждения начальных слоев соответствовали режимам, обеспечивающим наиболее высокие сверхпроводниковые характеристики пленок толщиной  $0.3-0.5\,\mu$ m, полученных на соответствующих установках [7]. Скорость роста пленок была выбрана немного превышающей скорость, обеспечивающую колебательный режим на начальных стадиях роста [3].

Характеристики пленок исследовались методом рассеяния ионов средних энергий на установке, описанной Ионы He<sup>+</sup> с энергией 190 keV, рассеянные в [8]. на угол 120°, регистрировались электростатическим анализатором с разрешением  $\Delta E/E = 0.005$  в условиях каналирования или же произвольной ориентации пучка. На рис. 1 приведены энергетические спектры ионов, рассеянных в образце с усредненной толщиной покрытия 0.46 nm (№ 1 в таблице), полученные при каналировании и произвольной ориентации пучка. В спектрах пик, соответствующий барию, хорошо отделен от пиков меди и иттрия. Это позволило по форме пика определять толщину покрытия и ее разброс для каждой пленки, а по сравнению амплитуд пика бария и сигнала от подложки в предположении стехиометрического состава пленки YBCO — степень покрытия подложки пленкой. В некоторых случаях эту степень можно было также определить по сравнению площади поверхностного пика титана с аналогичной величиной для чистого монокристалла STO. Такая оценка приведена в таблице в скобках. Оценки по барию и титану достаточно близки.

№ пленки	Режим	t, min	<i>h</i> , nm	$\sigma, \mathrm{nm}$	С	<i>hC</i> , nm	hC/t, nm/min	$\chi_{ m min}$
1	Ι	5.3	1.7	2.4	0.27 (0.4)	0.46	0.09	0.9
2	II	10	1.7	0.5	0.56	0.97	0.1	0.6
3	Ι	10.7	2.3	0.8	0.5 (0.6)	1.13	0.11	0.8
4	II	20	2.9	0.7	0.6	1.75	0.09	0.5
5	Ι	20.3	2.9	0.7	0.6	1.75	0.08	0.4
6	II	60	7.3	0.9	1	7.3	0.12	0.15

Параметры выращенных пленок ҮВСО



**Рис. 1.** Спектры ионов He<sup>+</sup> с энергией 190 keV, рассеянных на образце № 1. Темные треугольники — спектр при произвольной ориентации, светлые — при каналировании.



**Рис. 2.** Сравнение пиков бария в спектрах образцов № 1 (треугольники) и № 2 (кружки). Светлые — каналирование, темные — произвольная ориентация; сплошные кривые — модельный расчет.

Процедура определения средней толщины пленки на покрытых участках (высота островков — h), ее разброса —  $\sigma$  и толщины покрытия, усредненной по всей площади подложки hC при неполном покрытии пленкой подложки, описана в [4]. Она основана на сравнении крутизны переднего и заднего фронтов пика бария с модельными расчетами.

Состав пленки оценивался по соответствию модельного расчета спектра экспериментальному. Для всех пленок удовлетворительное согласие давал состав YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>. О совершенстве кристаллической структуры пленки можно судить по минимальному выходу  $\chi_{\min}$ , определяемому как отношение сигналов в условиях каналирования и произвольной ориентации сразу после поверхностного пика.

Результаты измерения параметров пленок даны в таблице, где для каждого исследованного образца приведены время осаждения t, средняя толщина на покрытых участках h, ее разброс  $\sigma$ , степень покрытия подложки C, толщина, усредненная по всей поверхности подложки hC, скорость роста hC/t и минимальный выход  $\chi_{min}$ .

398

Остановимся подробнее на двух самых тонких образцах — № 1 и 2. Средняя высота островков на них составляет около 1.7 nm, т.е. лишь немного превышает мономолекулярное покрытие для с-ориентированной пленки. Спектры пиков бария для этих образцов  $Y_c(E)$ (каналирование) и  $Y_r(E)$  (произвольная ориентация), а также их отношение  $\chi(E) = Y_c(E)/Y_r(E)$  приведены на рис. 2. Хорошее согласие расчетной формы спектра с экспериментом (сплошные линии на рис. 2) было получено в предположении, что в пленке № 1 форма островков близка к пирамидальной (трехмерная модель роста), а в пленке № 2 — к прямоугольной, однородной по толщине (двумерная модель). Как следует из таблицы, величина σ для образца № 1 превышает высоту островков *h* и вдвое больше постоянной *c* решетки YBCO. Большое значение (0.9) величины  $\chi_{\min}$  для этой пленки свидетельствует о несовершенстве ее кристаллической структуры.

В отличие от пленки № 1 для образца № 2  $\sigma < c < h$ , что характерно для двумерной модели. Минимальный выход  $\chi_{\min} = 0.6$  свидетельствует об эпитаксиальном характере роста.

Для остальных образцов ( $\mathbb{N}_{2}$  3–6) также выполняется условие  $\sigma < c < h$ , т.е, рост как островков, так и сплошной пленки происходит по двумерной модели. При этом для образцов с h < 3c пленка не полностью покрывает подложку. По-видимому, образование отдельных островков с  $h \cong 2c$  связано с тем, что скорость роста YBCO параллельно подложке на открытом STO в нашем случае меньше, чем на первом слое самой YBCO пленки. По мере возрастания толщины наблюдается уменьшение минимального выхода. Анализ зависимостей  $\chi(E)$  показал, что для пленок, выращенных в режиме I, глубина дефектного поверхностного слоя больше, чем для режима II, и может превышать *c*.

Тот факт, что при близких условиях рост мог происходить как по двумерной, так и по трехмерной моделям, свидетельствует о высокой критичности характера роста к небольшим изменениям режима. Хотя результаты ряда работ свидетельствуют о том, что для роста пленок YBCO на подложках STO характерна двумерная модель [4,5], в работе [2], как и в настоящей работе, был обнаружен переход от двумерного к трехмерному росту с изменением режима.

Представляется интересным сравнить характер роста пленок YBCO на подложке STO, исследованный в данной работе, с результатами, полученными тем же методом в работе [4] для пленки YBCO на MgO подложке. В этой работе также измерены величины h,  $\sigma$ , C и  $\chi_{\min}$  при высотах островков от 4 до 19 nm. Для всех этих образцов оказалось, что  $\sigma \ge h \gg c$ , т.е. имел место островковый рост. Минимальный выход был близок к 1. Степени покрытия были меньше, чем в нашем случае. Изменение температуры подложки влияло только на скорость осаждения, но не на моду роста.

В заключение можно отметить, что исследование характеристик роста сверхтонких (1.7-7 nm) пленок

 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  на SrTiO<sub>3</sub> (100) монокристаллической подложке методом рассеяния ионов средних энергий показало, что рост пленок может происходить по двум моделям: двумерной с образованием достаточно гладких островков и трехмерной с большим разбросом толщины покрытия, превышающим постоянную решетки *с*. Возможность обеих моделей роста при режимах, соответствующих оптимальным условиям получения сверхпроводящих пленок, свидетельствует о критичности модели роста к вариациям условий выращивания.

## Список литературы

- J.P. Gong, M. Kawasaki, K. Fujito, R. Tsuchiya, M. Yoshimoto, H. Koinuta. Phys. Rev. B50, 5, 3280 (1994).
- [2] T. Tsurumaki, S. Uehara, M. Mukaida. Jpn. J. Appl. Phys. 35–2, 8A, L978 (1996).
- [3] Е.К. Гольман, В.И. Гольдрин, Д.А. Плоткин, С.В. Разумов, С.А. Кукушкин, А.В. Осипов. ФТТ **39**, *2*, 216 (1997).
- [4] В.В. Афросимов, Р.Н. Ильин, С.Ф. Карманенко, В.И. Сахаров, А.А. Семенов, И.Т. Серенков, Д.В. Яновский. ФТТ 41, 4, 588 (1999).
- [5] D. Hüttner, O. Meyer, J. Reiner, G. Linker. Nucl. Instr. and Meth. B118, 573 (1996).
- [6] Е.К. Гольман, В.В. Афросимов, Р.Н. Ильин, Д.А. Плоткин, С.В. Разумов, В.И. Сахаров, И.Т. Серенков. Перспективные материалы 6, 10 (1998).
- [7] A.B. Kozyrev, E.K. Hollmann, A.V. Ivanov, O.I. Soldatenkov, T.V. Rivkin, C.H. Mueller, G.A. Koepf. Integrated Ferroelectrics 17, 257 (1997).
- [8] 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).