02,13

Подстройка параметров туннельного барьера СИС-перехода путем варьирования состава верхнего электрода

© А.М. Чекушкин, М.Е. Парамонов, В.П. Кошелец

Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия E-mail: chekushkin@hitech.cplire.ru

Поступила в Редакцию 18 апреля 2024 г. В окончательной редакции 18 апреля 2024 г. Принята к публикации 8 мая 2024 г.

Рассмотрено влияние верхнего электрода нитрида ниобия в многослойной структуре Nb|Al-AlN|NbN на параметры туннельного барьера (AlN). Показано, что повышение концентрации азота в газовой смеси Ar/N₂ при формировании NbN методом магнетронного распыления приводит к уменьшению туннельной прозрачности барьера AlN.

Ключевые слова: Сверхпроводниковые устройства, туннельный переход сверхпроводник-изоляторсверхпроводник, туннельный барьер AlN, плазмохимическое травление.

DOI: 10.61011/FTT.2024.07.58370.39HH

1. Введение

Параметры туннельного барьера в переходе сверхпроводник-изолятор-сверхпроводник (СИС) являются критически важными при изготовлении приемных устройств терагерцового диапазона. Для большинства приемных устройств используются туннельные СИС-переходы на основе ниобия [1-4]. Считается, что определяющим фактором прозрачности барьера является способ его формирования: окисление или нитридизация. Независимо от способа, в качестве параметров формирования барьера выступают время (окисления или нитридизации) и давление рабочего газа (кислорода либо азота), а для нитридизации еще мощность магнетрона и расстояние между магнетроном и подложкой [5]. В настоящей работе показано, что еще одним важным фактором является состав и материал верхнего электрода в СИС-переходе, в частности, слой металла, непосредственно осаждаемый на поверхность барьера (тонкий прибарьерный слой). Были изготовлены образцы с разным содержанием азота в верхнем электроде СИС-перехода Nb-Al-AlN-Nb(N). Показано, что чем выше содержание азота, тем ниже прозрачность туннельного барьера при одном и том же способе формирования перехода AlN-Nb(N). Уменьшение прозрачности также подтверждается тенденцией роста основных параметров туннельного барьера (высоты потенциального барьера и его ширины), рассчитанных в соответствии с теорией Дж. Симмонса [6]. Такая зависимость связана с диффузией азота между слоями Al, AlN и Nb(N).

2. Изготовление образцов

Технология изготовления СИС-структур на основе ниобия и его соединений методом селективного трав-

ления и анодизации ниобия (нитрида ниобия) является развитой и хорошо воспроизводимой [3–5]. Важной особенностью этой технологии изготовления является тот факт, что тонкий слой алюминия выравнивает столбчатую структуру поверхности ниобия [3,4], смачивая его. Это позволяет обеспечить гладкую поверхность алюминия, на основе которой будет формироваться туннельный барьер. Этот барьер может быть оксидным (AlO_x) или нитридным (AlN). Тип барьера подбирается в зависимости от поставленных задач: барьер из AlN позволяет достичь более высоких плотностей тока (до 100 kA/cm^2) [5,7,8] в сравнении с барьерами из AlO_x (до 15 kA/cm^2), что, в свою очередь, дает возможность существенно расширить входную полосу приемника.

Формирование рабочей структуры СИС происходит в несколько этапов: осаждение трехслойной структуры СИС, травление верхнего электрода в этой структуре для формирования площади СИС-перехода, осаждение изоляции, формирование замыкателя и контактных площадок.

Образцы были изготовлены на кремниевых подложках, с ориентацией $\langle 100 \rangle$, на которые методом магнетронного распыления осаждался слой Al₂O₃, толщиной 100 nm — он необходим, чтобы предотвращать травление подложки в последующих технологических операциях. При помощи метода оптической фотолитографии была сформирована маска из резиста, которая определяет геометрию базового электрода. Осаждение СИС-структуры Nb|Al-AlN|NbN с толщинами 200 nm|7 nm-(1–1.5 nm)|100 nm осуществлялось в едином вакуумном цикле в установке магнетронного распыления. Затем методом взрыва в диметилформамиде осуществлялось удаление фоторезиста с трехслойной структурой на нем. После этого на поверхности трехслойной структуры методом фотолитографии происходило

формирование площади СИС-перехода. Для этого по маске из фоторезиста производилось плазмохимическое травление верхнего слоя (Nb(N)) во фторсодержащих газах (CF₄), после чего производилась анодизация, а затем осаждение изоляции (SiO₂, 250 nm), в конце этого этапа фоторезист с нанесенным на него слоем SiO₂ был удален в диметилформамиде. Замыкатель был изготовлен из слоя Nb толщиной 350 nm при помощи метода фотолитографии. Контактные площадки формировались из золота толщиной 100 nm. Более подробно технология изготовления джозефсоновских переходов на основе Nb|Al-AlN|NbN описана в статье [9].

Все изготовленные и исследованные образцы проходили одни и те же циклы формирования структур. Слои Nb и Al в структуре Nb|Al-AlN|NbN формировались одинаково для всех образцов. Туннельный барьер из AlN формировался при помощи нитридизации поверхности Al в плазме чистого азота, которая инициирована на алюминиевом магнетроне. Такой способ нитридизации позволяет избежать нежелательной бомбардировки поверхности слоя Al, которая неизбежна, если осуществлять инициирование плазменного разряда при помощи BЧ-генератора, подающего мощность непосредственно на держатель с образцом.

Параметры формирования барьера, которые оставались неизменными: газ — азот, давление $7.9 \cdot 10^{-3}$ mbar, мощность, подаваемая на ВЧ магнетрон, 50 W, расстояние между образцом и магнетроном 130 mm. Изменяемым параметром было время нитридизации: 90 s или 180 s. Важно отметить, что процесс формирования нитрида алюминия на поверхности алюминия не связан с осаждением материала из-за распыления мишени, а связан только с взаимодействием ионов азота с поверхностью алюминия на образце. Верхним электродом СИС-перехода был нитрид ниобия или ниобий. Следующие параметры при формировании этого слоя были постоянными: мощность, подаваемая на магнетрон на постоянном токе, 650 W, расстояние между образцом и мишенью 50 mm, поток аргона 70 sccm. Изменяемым параметром был поток азота: 6, 7, 8, 10 sccm. При отсутствии потока азота формировался чистый ниобий. Давление смеси газов Ar и N2 в камере в момент осаждения NbN — 9.3–9.5 · 10⁻³ mbar. Верхний ниобий в СИС-структуре формировался таким же образом, как и нижний.

3. Определение основных параметров туннельного барьера

Как отмечалось выше, в процессе формирования барьерного слоя СИС-перехода, тонкая пленка Al подвергается окислению/нитридизации с образованием слоя изолятора. Пленка алюминия должна иметь толщину 5 nm и более, чтобы полностью покрыть неровности в слое Nb [4]. Характерные толщины барьеров AlO_x или AlN, сформированных на пленке алюминия, составляют порядка 1 nm. Описанный ниже метод позволяет оценить параметры туннельного барьера.

Параметрами, характеризующими прозрачность изготовленного туннельного барьера, являются его толщина d и средняя высота φ . Существует универсальная методика определения параметров d и ϕ из вольт-амперной характеристики (ВАХ) СИС-перехода, измеренной до высоких напряжений ~ 1 В. Методика основана на измерении и аппроксимации зависимости плотности туннельного тока от напряжения, которая была предложена Дж. Симмонсом [6] и обобщена В. Бринкманом [10] для туннельных переходов в пределе напряжений, соответствующих энергиям, не превосходящим высоту барьера φ . Расчетные формулы и методика подробно изложены в работе [11]. Для переходов, исследованных в этой работе, были рассчитаны параметры d и φ , позволяющие дать количественную оценку прозрачности полученного барьера.

4. Измерения

До изготовления каждого образца были проведены напыления контрольных пленок NbN в тех же условиях, которые использовались при изготовлении СИСпереходов, что позволило определить основные параметры пленок (табл. 1, рис. 1).

Для этого была изготовлена маска, по которой методом фотолитографии были сформированы узкие полоски металла (NbN) длиной 1 ст и шириной 200 μ m, с контактными площадками. Температурные измерения пленок нитрида ниобия производилось в сосуде Дьюара с жидким гелием по 4-контактной схеме. Погружной зонд с образцом медленно опускался в сосуд Дьюара, сопротивление пленки и сопротивление термометра измерялись с периодом 0.5 s.

Из табл. 1 видно, что параметром, сильно зависящим от количества азота в газовой смеси, является удельное сопротивление, которое растет пропорционально содержанию азота в смеси. Еще одним важным параметром является размытие по температуре в области перехода пленки в сверхпроводящее состояние (ΔT_c). Из рис. 1 и табл. 1 видно, что, например, пленка с большей температурой перехода в сверхпроводящее состояние T_c = 14.7 К имеет больший наклон кривой R(T) в районе перехода в сверхпроводящее состояние $(\Delta T_c = 0.2 \text{ K})$, чем пленка с $T_c = 14.2 \text{ K} (\Delta T_c = 0.14 \text{ K}).$ Это может стать определяющим фактором при выборе необходимых параметров пленки для конкретных приложений, так как размытый переход в сверхпроводящее состояние свидетельствует о неоднородности состава пленки в момент ее роста.

Изготовленные образцы с СИС-переходами были измерены в режиме задания напряжения при температуре 4.2 К при помощи погружного зонда, опускаемого в сосуд Дьюара с жидким гелием. Каждый образец представлял собой общий электрод с 14 СИС-переходами на

Таблица 1. Параметры пленок NbN, в зависимости от потока азота, при постоянном потоке аргона 70 sccm: температура перехода в сверхпроводящее состояние T_c , отношение сопротивления пленок *R* при температурах 20 и 300 K, удельное сопротивление ρ при 20 K, размытие по температуре перехода в сверхпроводящее состояние

№ образца	Поток N ₂ , sccm	T_c , K	R_{20}/R_{300}	$ ho_{20}, \mu \Omega \cdot \mathrm{cm}$	ΔT_c , K
1	6	14.1	1.08	160	0.35
2	7	14.7	1.215	230	0.2
3	8	14.2	1.245	260	0.14
4	10	13.3	1.22	292	0.58



Рис. 1. Графики перехода пленок NbN в сверхпроводящее состояние, зависимость нормированного сопротивления (R/R_{300}) от температуры; нумерация графиков соответствует нумерации образцов в табл. 1.

нем; к каждому переходу был подведен свой замыкатель с контактной площадкой. На образце были представлены СИС-переходы с различными диаметрами, от 1.8 до 5.5 μ m. Считая, что параметры туннельного барьера (высота и ширина) одинаковы для каждого СИС-перехода в пределах одной подложки, можно провести расчет значения R_nS (произведение площади СИС-перехода на его нормальное сопротивление после сверхпроводящей щели), которое должно быть одинаковым для каждого перехода. Значение R_n определяется из ВАХ.

Исследовано 4 образца, у которых нижний слой (Nb) и барьер (Al-AlN) в СИС-переходе формировались одинаково, но слой нитрида ниобия формировался при различных условиях напыления: изменялось содержание азота в газовой смеси азот/аргон. Барьер сформирован в плазменном разряде чистого азота в режиме 50 W и 180 s. ВАХ для 4 образцов с различными R_nS , измеренными описанным ранее способом, представлены на рис. 2. Несмотря на то, что барьер в каждом образце был сформирован при одинаковых условиях, были получены разные значения R_nS , что подтверждает предположение

о влиянии верхнего слоя в СИС-структуре на ее параметры.

Для оценки основных параметров туннельных барьеров изготовленных образцов был проведен цикл измерений. На рис. З показана одна из полученных ВАХ и ее производная, представляющая зависимость дифференциальной проводимости перехода G = dI/dV от приложенного напряжения. Зависимость G(V) аппроксимировалась графиком полинома 3-й степени. Далее производился расчет основных параметров барьера в соответствии с методикой, описанной в [11]. Результаты расчетов параметров барьера вынесены в табл. 2.



Рис. 2. ВАХ СИС-переходов с разными плотностями тока для барьеров, сформированных одинаково, но имеющих разное количество азота при формировании слоя NbN: кривая 1 - поток N₂ = 6 sccm, $R_n S = 7.7 \Omega \cdot \mu m^2$; $2 - N_2 = 7 \text{ sccm}, R_n S = 13.8 \Omega \cdot \mu m^2$; $3 - N_2 = 8 \text{ sccm}, R_n S = 15 \Omega \cdot \mu m^2$; $4 - N_2 = 10 \text{ sccm}, R_n S = 22.2 \Omega \cdot \mu m^2$.



Рис. 3. ВАХ (IVC) СИС-перехода для образца с потоком Ar = 70 sccm, $N_2 = 10 \text{ sccm}$. Сплошная кривая (левая ось) — ВАХ туннельного СИС-перехода, измеренная в диапазоне напряжений $\pm 0.5 \text{ V}$. Кривая из кружков (правая ось) — зависимость дифференциальной проводимости перехода от напряжения. Пунктиром (правая ось) показана аппроксимация кубическим полиномом для *G*.

Таблица 2. Сводная таблица рассчитанных параметров барьера для туннельных переходов с различной концентрацией азота в газовой смеси при нитридизации, при одном и том же потоке аргона 70 sccm

Поток N ₂ , sccm	$R_n S, \Omega \cdot \mu m^2$	φ , eV	<i>d</i> , Å
6	8	0.29	11.9
7	14	0.3	12.6
8	15	0.34	12.5
10	22	0.37	13.8



Рис. 4. ВАХ СИС-переходов с одинаковыми электродами из NbN, но с разными барьерами AlN: для обоих графиков мощность, подаваемая на ВЧ-магнетрон, составляла 50 W, кривая *1* — время нитридизации 90 s, кривая *2* — время нитридизации 180 s.

Как видно из табл. 2, по мере увеличения концентрации азота в смеси газов при нитридизации происходит характерный рост как толщины d изоляционного слоя, так и высоты барьера φ , что подтверждает уменьшение прозрачности туннельного барьера с ростом R_nS .

Чтобы изучить влияние параметров формирования барьера на свойства СИС-переходов, были изготовлены образцы с одинаковым верхним слоем NbN, с параметрами процесса напыления Ar = 70 sccm, N₂ = 7 sccm, 650 W, но с разным временем нитридизации барьера: 90 и 180 s. Их ВАХ, представленные на рис. 4, подтверждают, что процесс формирования туннельного барьера существенно (на 67%) изменяет параметр R_nS (8.4 $\Omega \cdot \mu m^2$ и 14 $\Omega \cdot \mu m^2$).

Для случая барьера, сформированного с параметрами 50 W и 90 s, был изготовлен СИС-переход с верхним электродом из Nb вместо NbN, ВАХ такого перехода представлена на рис. 5. Туннельный барьер из AlN формировался одинаковым образом, однако разница в величине R_nS получилась очень большой: $8.4 \Omega \cdot \mu m^2$ для NbN и 3 $\Omega \cdot \mu m^2$ для Nb. По-видимому, слой ниобия "отбирает" азот из слоя AlN за счет процессов диффузии, тем самым значительно повышая прозрачность туннельного барьера. Этот пример иллюстрирует значительное влияние верхнего слоя в СИС-структуре на свойства туннельного барьера.

Были изготовлены образцы с близкими R_nS (~ 8 $\Omega \cdot \mu m^2$, которые имели разные параметры формирования барьера (50 W, 180 s и 50 W, 90 s), разные параметры формирования верхнего нитрида ниобия (Ar = 70 sccm, N₂ = 6 sccm и Ar = 70 sccm, N₂ = 7 sccm). Результаты измерений ВАХ этих образцов приведены на рис. 6. Отличие величины нормального сопротивления R_n выше сверхпроводящей щели обусловлено различием площадей туннельных переходов.

Из рис. 6 видно, что несмотря на разные условия при формировании СИС-перехода, образцы с одинаковым $R_n S$ (~ 8 $\Omega \cdot \mu m^2$ имеют близкие параметры: отношение подщелевого сопротивления к нормальному сопротив-



Рис. 5. ВАХ СИС-перехода Nb–Al–AlN–Nb с барьером, сформированным с параметрами 50 W, 90 s.



Рис. 6. ВАХ СИС-переходов с одинаковым R_nS , но с различными параметрами изготовления туннельного барьера (AlN) и верхнего электрода (NbN) в СИС-структуре: кривая 1 — время нитридизации барьера 180 s, поток азота для NbN 6 sccm, кривая 2 — время нитридизации барьера 90 s, поток азота для NbN 7 sccm.

лению (R_j/R_n) 23 и 24.4, размытие щелевой особенности 0.418 и 0.355 mV, значение сверхпроводящей щели V_g 3.49 и 3.47 mV. Этот результат позволяет сделать вывод о том, что получение требуемого R_nS может быть достигнуто не только варьированием параметров при формировании барьера, но и при помощи изменения параметров формирования верхнего электрода в СИСструктуре без потери качества самого перехода. Такой вывод может быть особенно полезен, когда требуется сформировать низкие R_nS (~ 1 $\Omega \cdot \mu$ m²), а уменьшение времени нитридизации или не позволяет достичь этих значений, или становится слишком коротким (< 10 s), что негативно сказывается на воспроизводимости таких переходов.

5. Заключение

В СИС-переходе варьирование содержания азота в верхнем слое нитрида ниобия позволяет наравне с известными методами (изменение давления, продолжительность формирования барьера и др.) осуществлять тонкую настройку прозрачности туннельного барьера. Показано, что повышение концентрации азота в смеси газов Ar и N₂ при напылении верхнего слоя СИСструктуры приводит к понижению прозрачности туннельного барьера. Варьирование параметров напыления нитрида ниобия вместе с подбором параметров изготовления туннельного барьера позволяет получить СИСпереходы со схожими параметрами, такими, как R_nS, $V_{g}, R_{i}/R_{n}$, без потери качества самого перехода. Такой подход к формированию СИС-структур открывает новые возможности для управления параметрами туннельных переходов и создания приемных устройств на их основе, сохраняя воспроизводимость процесса изготовления.

Финансирование работы

Работа выполнена за счет гранта РНФ (№ 23-79-00019, https://rscf.ru/project/23-79-00019/).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] J.M. Rowell, M. Gurvitch, J. Geerk. Phys. Rev. B 24, 4, 2278(R) (1981).
- [2] M. Gurvitch, M.A. Washington, H.A. Huggins. Appl. Phys. Lett. 42, 5, 472 (1983).
- [3] T. Imamura, T. Shiota, S. Hasuo. IEEE Trans. Appl. Supercond. 2, *I*, 1 (1992).
- [4] T. Imamura, S. Hasuo. IEEE Trans. Appl. Supercond. 2, 2, 84 (1992).
- [5] P.N. Dmitriev, I.L. Lapitskaya, L.V. Filippenko, A.B. Ermakov, S.V. Shitov, G.V. Prokopenko, S.A. Kovtonyuk, V.P. Koshelets. IEEE Trans. Appl. Supercond. 13, 2, 107 (2003).

- [6] A.W. Kleinsasser, R.E. Miller, W.H. Mallison. IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 2 Part 3, 2318 (1995).
- [7] J.G. Simmons. J. Appl. Phys. 34, 6, 1793 (1963).
- [8] M.Yu. Torgashin, V.P. Koshelets, P.N. Dmitriev, A.B. Ermakov, L.V. Filippenko, P.A. Yagoubov. IEEE Trans. Appl. Supercond. 17, 2, 379 (2007).
- [9] А.М. Чекушкин, Л.В. Филиппенко, М.Ю. Фоминский, В.П. Кошелец. ФТТ 64, 10, 1399 (2022). [А.М. Chekushkin, L.V. Filippenko, М.Ү. Fominskiy, V.P. Koshelets. Phys. Solid State 64, 10, 1382 (2022)].
- [10] W.F. Brinkman, R.C. Dynes, J.M. Rowell. J. Appl. Phys. 41, 5, 1915 (1970).
- [11] М.Е. Парамонов, Л.В. Филиппенко, П.Н. Дмитриев, М.Ю. Фоминский, В.П. Кошелец. Радиотехника и электроника 64, 10, 1029 (2019). [М.Е. Paramonov, L.V. Filippenko, P.N. Dmitriev, М.Ү. Fominsky, V.P. Koshelets. J. Commun. Technol. Electron. 64, 10, 1144 (2019)].

Редактор Е.В. Толстякова