

На правах рукописи

Зикий Евгений Владимирович

**Исследование и разработка технологии формирования базовых слоев  
сверхпроводниковых интегральных схем на основе тантала и ниобия**

Специальность 2.2.3. Технология и оборудование для производства материалов и  
приборов электронной техники

Автореферат диссертации на соискание ученой степени  
кандидата технических наук



Москва – 2025

Работа выполнена в федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Московский государственный технический университет имени Н.Э. Баумана (национальный исследовательский университет)» (МГТУ им. Н.Э. Баумана).

Научный руководитель:

**Бычков Сергей Павлович,**  
кандидат технических наук, доцент

Официальные оппоненты:

**Ли Илларион Павлович,**  
доктор технических наук,  
ФГБОУ ВО МИРЭА - Российский  
технологический университет,  
заведующий базовой кафедрой

**Гусев Алексей Васильевич,**  
кандидат технических наук,  
ФГБУН Институт теоретической и  
прикладной электродинамики РАН,  
заведующий лабораторией №8

Ведущая организация:

**ФГАУ «Федеральный научный центр  
Научно-исследовательский институт системных  
исследований» НИЦ «Курчатовский институт»**

Защита диссертации состоится «...» ..... 2025 г. в 14:30 часов на заседании диссертационного совета 24.2.331.16 в Московском государственном техническом университете им. Н.Э. Баумана по адресу: 105005, г. Москва, 2-ая Бауманская ул., д. 5, стр.1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Московского государственного технического университета им. Н.Э. Баумана и на сайте [www.bmstu.ru](http://www.bmstu.ru)

Отзывы на автореферат в двух экземплярах, заверенные печатью, просим направлять по указанному адресу на имя ученого секретаря диссертационного совета.

Автореферат разослан « \_\_\_\_ » \_\_\_\_\_ 2025 г.

Телефон для справок: 8 (499) 263-66-33 \*3628

Ученый секретарь  
диссертационного совета 24.2.331.16  
к.т.н.

Сырицкий Антони Борисович

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### Актуальность темы исследования.

Увеличение производительности вычислительных устройств – одна из важнейших задач современности. Развитие полупроводниковой вычислительной техники позволило преодолеть границу  $10^{18}$  операций с плавающей запятой в секунду (FLOPS). Однако, высокая удельная рассеиваемая мощность схем (более  $100 \text{ Вт/см}^2$ ) из-за тепловыделения при изменении состояния КМОП-транзисторов и задержки сигнала в межсоединениях приводят к значительным энергозатратам на вычисления (десятки МВт для суперкомпьютеров) и к необходимости ограничения рабочей частоты несколькими гигагерц. Одна из возможностей дальнейшего увеличения производительности вычислений, а также снижения энергозатрат на вычисления заключается в использовании гибридных вычислительных устройств, включающих сопроцессоры на основе квантовых и классических сверхпроводниковых интегральных схем с туннельными джозефсоновскими переходами (ДП) – субмикронными тонкоплёночными структурами сверхпроводник-изолятор-сверхпроводник.

Значительный вклад в развитие физико-технологических основ формирования сверхпроводниковых интегральных схем с классической и квантовой логикой внесли фундаментальные работы К.К. Лихарева, В.К. Семёнова, Я. Накамура, Ю.А. Пашкина и В.П. Кошельца, а также работы научных групп под руководством Дж. Мартиниса (Калифорнийский университет Санта Барбара, США), С.К. Толпыго (Массачусетский технологический институт, США), С. Нагасава (Японский национальный институт передовых промышленных наук и технологий, Япония) и А. Вальрафа (Швейцарская высшая техническая школа Цюриха).

Интегральная сверхпроводниковая схема с **квантовой логикой** на основе квантовых битов (кубитов) представляет собой сеть из ДП типа  $\text{Al}/\text{AlOx}/\text{Al}$ , планарных конденсаторов, микроволновых резонаторов и линий передачи. С точки зрения времени когерентности кубитов (время сохранения возбужденного состояния) большое значение имеют поверхности раздела (интерфейсы) на схеме, например, сверхпроводник – воздух или подложка – сверхпроводник. В качестве материала базового слоя, то есть всех линий передачи, резонаторов и конденсаторов традиционно используют алюминий или ниобий. Однако, для дальнейшего увеличения времени когерентности квантовых схем требуется более химически стойкий материал, который позволит проводить постобработку схем в агрессивных растворах (например, растворе серной кислоты и перекиси водорода или плавиковой кислоте) для удаления органических остатков и технологических оксидов с целью снижения потерь энергии на интерфейсах схем. Наиболее перспективным материалом на данный момент является тантал, активное применение которого в сверхпроводниковых кубитах началось лишь в 2021 году. Сложность использования тантала в схемах обусловлена существованием двух стабильных фаз в случае тонких плёнок: альфа и бета. Получение бета-фазы технологически более простое, но криогенные параметры бета-тантала не соответствуют требованиям, предъявляемым к материалам квантовых схем. Таким

образом, чистота альфа-фазы тантала оказывает определяющее влияние на эффективность сверхпроводниковых кубитов, однако на данный момент достоверно не известен механизм фазового отбора в тонких плёнках тантала и влияние параметров операции формирования плёнки на её свойства.

Интегральная сверхпроводниковая схема с **классической** (одноквантовой) **логикой** представляет собой сеть из ДП, индукторов, резисторов и линий передачи. Ключевым материалом одноквантовых сверхпроводниковых схем является тонкоплёночный ниобий, на основе которого формируются индукторы, линии передачи и ДП типа Nb/Al/AlOx/Nb. Поскольку схемы с плотностью интеграции более  $10^6$  ДП/см<sup>2</sup> содержат десятки слоёв с микронными и субмикронными элементами и требуют применения химико-механической планаризации, важны не только электрические (электрическое сопротивление, коэффициент остаточного сопротивления, критическая температура), но и механические (шероховатость, внутренние напряжения) свойства плёнок ниобия. Управление уровнем внутренних напряжений в различных слоях схемы при сохранении электрических параметров плёнок при криогенных температурах на высоком уровне является важнейшей задачей. При этом существующая модель прогнозирования значений внутренних напряжений в плёнках, полученных магнетронным распылением, имеет ограниченную точность ввиду многих упрощений и требует уточнения. В открытых источниках представлено множество исследований влияния технологических параметров процесса магнетронного распыления на отдельные характеристики плёнок ниобия, однако, отсутствует комплексное изучение механических и электрических параметров плёнок, и их взаимосвязь не ясна. Измерение всех значимых параметров плёнок в рамках единого экспериментального исследования позволит определить взаимосвязи между параметрами и обоснованно устанавливать режимы процесса магнетронного распыления, совместимые с технологией многослойных схем быстрой одноквантовой логики.

**Целью диссертационной работы** является разработка физико-технологических основ формирования тонких пленок тантала и ниобия для повышения надёжности и производительности сверхпроводниковых интегральных схем, а именно сверхпроводниковых кубитов и схем одноквантовой логики. Для достижения поставленной цели необходимо решить ряд **задач**:

1. Провести анализ факторов, ограничивающих время когерентности сверхпроводниковых кубитов и производительность сверхпроводниковых схем с одноквантовой логикой. Определить направления развития технологий формирования базовых слоёв сверхпроводниковых интегральных схем.

2. Выполнить экспериментальное исследование влияния предварительной обработки подложки и параметров процесса магнетронного распыления на фазовый состав и морфологию тонких плёнок тантала. Разработать режим формирования базового слоя сверхпроводниковых кубитов на основе тантала.

3. Провести экспериментальное исследование роста плёнок тантала с толщиной от 5 до 20 нм на кремнии и его влияния на структуру плёнок с толщиной 150 нм, используемых в сверхпроводниковых квантовых цепях, посредством сканирующей

электронной микроскопии (СЭМ), атомно-силовой микроскопии (АСМ) и дифракции отражённых электронов (ДОЭ).

4. Выполнить уточнение кинетической модели формирования внутренних напряжений в тонких плёнках, полученных высокоэнергетическими методами, для снижения ошибки аппроксимации и представления экспериментальных результатов в аналитическом виде.

5. Провести экспериментальное исследование зависимостей свойств тонких плёнок ниобия от параметров процесса магнетронного распыления, позволяющих обоснованно устанавливать параметры процесса для получения требуемых механических и электрических свойств плёнок.

#### **Научная новизна работы:**

1. Для тонких плёнок ниобия, полученных магнетронным распылением, обнаружено критическое значение рабочего давления аргона, ниже которого внутренние напряжения в пленках изменяются монотонно в широком диапазоне, а структурные (шероховатость) и электрические (электрическое сопротивление, температура сверхпроводящего перехода, коэффициент остаточного сопротивления) параметры пленок имеют максимальные значения для данной мощности распыления и конфигурации распылительной установки.

2. Предложено уточнение кинетической модели формирования внутренних напряжений в тонких пленках для высокоэнергетических методов, отличающееся заменой линейных коэффициентов модели, отвечающих за влияние рабочего давления на уровень внутренних напряжений, на нелинейные с насыщением.

3. Предложена и экспериментально подтверждена модель формирования тонкой пленки  $\alpha$ -Ta на кремнии при нагреве подложки, отличающаяся тем, что рост плёнки происходит в два этапа: изначально формируется тонкий подслой  $\beta$ -Ta, поверх которого растёт  $\alpha$ -фаза.

**Практическая значимость.** Предложены технологии формирования магнетронным распылением тонкопленочных покрытий на основе ниобия и тантала для создания сверхпроводниковых интегральных схем, к которым относятся сверхпроводниковые кубиты и схемы одноквантовой логики (Single Flux Quantum, SFQ).

**Результаты внедрения.** Разработанный базовый маршрут технологического процесса, методики и модели внедрены при реализации НИОКР, проводимых совместно ФГУП «ВНИИА им. Н.Л. Духова» и МГТУ им. Н.Э. Баумана.

**Методы исследования.** Для решения поставленных задач в работе проведены экспериментальные исследования по определению влияния режимов процесса магнетронного распыления на характеристики тонкопленочных структур при комнатной и криогенной температуре. Изготовлено и исследовано более 250 экспериментальных образцов. Результаты экспериментальных исследований обработаны методами дисперсионного анализа. Для контроля параметров формируемых структур использовались следующие методы измерения: оптическая и электронная микроскопия для измерения линейных размеров и оценки состояния поверхности тонкопленочных структур, атомно-силовая микроскопия и контактная профилометрия для измерения шероховатости поверхности, дифракция

отражённых электронов для определения кристаллографической ориентации. Измерение электрических характеристик структур осуществлялось при комнатной и криогенной температуре с использованием криостата растворения.

**Достоверность полученных результатов, выводов и рекомендаций диссертационной работы** обусловлена использованием современного поверенного метрологического оборудования, проведенных экспериментальных исследований, согласованностью теоретических и экспериментальных результатов, а также внедрением разработанных методик и режимов работы технологического оборудования в НИР, проводимых НОЦ «ФМНС» МГТУ им. Н.Э. Баумана.

**Основные положения, выносимые на защиту:**

1. Разработанные технологические режимы формирования тонких пленок ниобия магнетронным распылением для сверхпроводниковых интегральных схем (SFQ) на основе определения критического рабочего давления в диапазоне от 0,3 до 3,0 мТорр при мощности в диапазоне от 200 до 400 Вт обеспечивают управляемое изменение внутренних напряжений в плёнке в диапазоне от сжатия 400 МПа до растяжения  $600 \pm 100$  МПа при комплексном сохранении высоких параметров формируемых плёнок с точки зрения SFQ-схем: шероховатость  $R_q$  менее  $0,8 \pm 0,4$  нм ( $R_z$  менее  $3,5 \pm 1,3$  нм), удельное электрическое сопротивление не более  $20,0 \pm 0,4$  мкОм×см, критическая температура сверхпроводящего перехода более  $8,90 \pm 0,05$  К и коэффициент остаточного сопротивления более  $6,40 \pm 0,01$ .

2. Предложенная замена линейных коэффициентов на показательные с основанием меньше единицы в кинетической модели формирования внутренних напряжений в тонких плёнках, полученных высокоэнергетическими методами осаждения, снижает среднюю ошибку аппроксимации экспериментальных данных с 20 до 8 %.

3. Экспериментально подтверждённый механизм формирования тонких плёнок  $\alpha$ -Ta на кремнии включает зарождение плёнки в виде сплошного слоя  $\beta$ -фазы тантала толщиной порядка 10 нм с электрическим сопротивлением порядка 150 мкОм×см, на котором зарождаются области  $\alpha$ -фазы с электрическим сопротивлением порядка 17 мкОм×см и разрастаются конусом в матрице  $\beta$ -фазы при дальнейшем увеличении толщины плёнки.

4. Разработанный технологический процесс формирования базового слоя сверхпроводниковых квантовых схем на основе тонких пленок тантала обеспечивает изготовление копланарных резонаторов с внутренней добротностью при однофотонной мощности более  $2 \times 10^6$  для планарных схем и более  $10 \times 10^6$  для траншейных схем в частотном диапазоне от 4,0 до 6,0 ГГц и кубитов с временем жизни  $T_1$  более 250 пс для планарных схем в частотном диапазоне от 4,2 до 5,1 ГГц.

**Апробация работы.** Результаты работы докладывались и обсуждались на российских научно-технических конференциях: XVI, XVII, XVIII научно-технические конференции «ВНИИА-2022», «ВНИИА-2023» и «ВНИИА-2024» (Москва, 2022-2024), XXVIII симпозиум «Нанофизика и

нанозлектроника-2024» (Нижний Новгород, 2024), XXIX симпозиум «Нанофизика и нанозлектроника-2025» (Нижний Новгород, 2025), форум «Микроэлектроника 2024» (Сочи, 2024), конференция «APS March Meeting 2024», а также семинарах кафедры «Электронные технологии в машиностроении» МГТУ им. Н.Э. Баумана.

**Публикации.** По материалам и основному содержанию работы опубликовано 8 научных работ в научно-технических журналах и трудах конференций, из которых 8 в научно-технических журналах, рецензируемых Web of Science и Scopus.

**Личный вклад.** Автор самостоятельно провел поиск и анализ литературных источников. Экспериментальные данные получены автором лично или с его непосредственным участием. Автором лично проведены все расчеты, получены результаты моделирования и подготовлены все графические иллюстрации, представленные в диссертационной работе. Автор лично разработал операции формирования тонких пленок ниобия и тантала методом магнетронного распыления для сверхпроводниковых интегральных схем, а также технологический процесс формирования базового слоя сверхпроводниковых схем на основе тантала и ниобия.

**Структура и объем работы.** Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, общих выводов и списка литературы. Материалы диссертации изложены на 127 страницах, включают 29 рисунков, 10 таблиц, список литературы из 211 наименований.

## СОДЕРЖАНИЕ И РЕЗУЛЬТАТЫ ДИССЕРТАЦИИ

**Во введении** обоснована актуальность диссертационной работы, сформулированы цель и задачи исследования, обоснована научная новизна, а также приведены положения, выносимые на защиту.

**В Главе 1** проведен анализ современного состояния и технологий вычислительных сверхпроводниковых интегральных схем, выявлены дальнейшие пути развития технологий. Сформулированы требования к материалам базового слоя сверхпроводниковых интегральных схем и выявлено, что наиболее перспективным материалом для квантовых схем является тантал, а для классических схем лучшим выбором остаётся ниобий.

В работе показано, что дальнейшее увеличение времен когерентности сверхпроводниковых кубитов невозможно без снижения потерь энергии на интерфейсе подложка-вакуум, поэтому материал базового слоя должен обладать достаточной химической стойкостью для выполнения агрессивной постобработки с целью удаления органических загрязнений и технологических оксидов на кремнии. Тантал не только удовлетворяет этому требованию, но и имеет естественный оксид  $Ta_2O_5$  с низким содержанием двухуровневых систем, что означает дополнительное снижение потерь на интерфейсе металл-вакуум. Анализ показал, что замена алюминиевого базового слоя на танталовый может обеспечить увеличение времен энергетической релаксации кубита с уровня 100 – 200 мкс до уровня 300 – 500 мкс. При разработке технологии оценка потерь в квантовых схемах может эффективно осуществляться посредством измерения добротности

микроволновых копланарных резонаторов, так как считывающие резонаторы в квантовой схеме включены в базовый слой и формируются вместе с большей частью всей площади схемы.

Из анализа разработок в области сверхпроводниковых интегральных схем с классической логикой можно сделать вывод, что ниобий благодаря высокой критической температуре сверхпроводящего перехода 9,2 К и низкой кинетической индуктивности при толщине проводника порядка 150 – 200 нм является наилучшим материалом для многослойной технологии, однако, для реализации высокоскоростных схем (более 20 ГГц) с высокой плотностью интеграции (более  $10^6$  ДП/см<sup>2</sup>) необходимо формировать тонкие плёнки ниобия с высоким уровнем не только электрических, но и механических свойств (внутренние напряжения не более 300 МПа).

По результатам анализа можно заключить, что наилучшим методом формирования тонких плёнок тантала и ниобия для сверхпроводниковых интегральных схем является магнетронное распыление в сверхвысоковакуумной системе. В работе проанализированы существующие подходы к изготовлению базового слоя сверхпроводниковых интегральных схем. В литературе отсутствует единая точка зрения на методику выбора технологических режимов формирования тонких плёнок тантала и ниобия, оказывающих ключевое влияние на параметры тонкопленочных структур. Решение данной задачи требует комплексного экспериментально-теоретического исследования.

**Глава 2** разделена на две части и посвящена разработке и экспериментальному исследованию процесса формирования тонких плёнок Та для квантовых сверхпроводниковых интегральных схем. В первой части главы проведён анализ методов получения тонких плёнок тантала в альфа фазе. Установлено, что для формирования танталового базового слоя целесообразно применять осаждение на предварительно нагретую подложку, а для формирования танталовых воздушных мостов и бандажей целесообразно осаждают тантал на подслое ниобия для получения альфа фазы. В результате литературного анализа определено, что точно идентифицировать альфа фазу тантала позволяют значения удельного электрического сопротивления (до 23,5 мкОм×см), температуры сверхпроводящего перехода (выше 2 К), коэффициента остаточного сопротивления (более 2,5). Параметры кристаллической решётки, полученные методом рентгеноструктурного анализа, также однозначно определяют фазу тантала, однако, внутренние напряжения в тонкой плёнке могут привести к смещению пиков на РСА-спектре.

Литературный анализ показал, что на данный момент механизм фазовой селекции в тонких плёнках Та достоверно не известен. В большинстве из выдвинутых предположений ключевая роль отводится наличию атомов кислорода и воды на поверхности подложки. Это открывает возможности по управлению фазовым составом плёнок Та посредством удаления адсорбатов с поверхности подложки с помощью предварительной обработки.

Во второй части главы приводятся результаты экспериментальных исследований механизма формирования тонких плёнок  $\alpha$ -Та и влияния параметров

процесса магнетронного распыления на свойства плёнок. Эксперименты по предобработке подложек (ионное травление, отжиг при 800°C, пассивирование поверхности кремния плавиковой кислотой) перед осаждением тантала без нагрева показали, что влияние нагрева подложки не сводится только к удалению с неё адсорбатов. Нагрев является необходимым энергетическим условием формирования  $\alpha$ -фазы тантала на подложках типа кремний и сапфир. Для кремния критическая температура подложки для формирования  $\alpha$ -фазы составила 450 °C, для сапфира 400°C (Рисунок 1, а).

Исследование влияния параметров процесса магнетронного распыления при осаждении тантала показало, что процессное давление в диапазоне от 0,3 до 9,0 мТорр не оказывает существенного влияния ни на электрическое сопротивление плёнки, ни на шероховатость. Это обусловлено сохранением фазового состава в этом диапазоне давлений и тем, что критическое значение рабочего давления не было достигнуто, коэффициент отражения границ зёрен не изменился. Температура нагрева подложки оказалась более значимым фактором, и температурный диапазон от 450 до 800 °C был исследован с целью исключить возможность фазового перехода внутри него. Был обнаружен рост электрического сопротивления при температуре 800 °C и резкий рост шероховатости  $R_q$  при температуре 700 и 800 °C (Рисунок 1, б). Рост шероховатости обусловлен увеличением размера кристаллита при повышении температуры, так как формирование плёнки происходит в зоне T на диаграмме Торнтон. Рост электрического сопротивления может свидетельствовать о начале нежелательных фазовых превращений. Таким образом, в случае кремниевых подложек целесообразно выбирать температуру подложки в диапазоне от 450 до 600 °C, что также обеспечивает значение коэффициента остаточного сопротивления порядка 9,9 и критической температуры порядка 4,05 К по результатам криогенных измерений плёнок 150 нм.

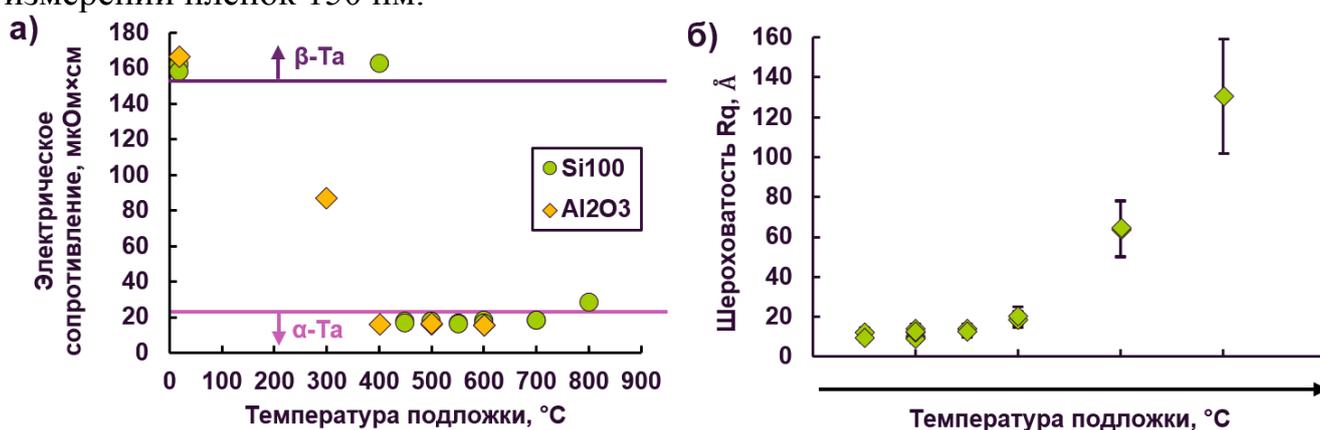


Рисунок 1. Зависимость электрического сопротивления (а) и шероховатости  $R_q$  (б) плёнок тантала от температуры подложки при осаждении.

На основе плёнок  $\alpha$ -Ta, сформированных по разработанной технологии, были изготовлены четвертьволновые копланарные резонаторы (Рисунок 2, б) в планарной и траншейной (с травлением подложки на глубину 2 мкм в зазоре между центральным проводником и заземляющей поверхностью с целью снижения энергетических потерь на интерфейсах) конфигурации. В криостате растворения с базовой температурой 10 мК были измерены внутренние добротности резонаторов

$Q_i$  в зависимости от приложенной мощности (от 1 до  $10^8$  фотонов). Внутренняя добротность при однофотонной мощности  $Q_{iLP}$  для планарных и траншейных Ta-резонаторов без дополнительной обработки превысила  $2,0 \times 10^6$  и  $3,0 \times 10^6$ , в то время как для алюминиевых с аналогичной конфигурацией не превышала  $1,2 \times 10^6$  и  $1,7 \times 10^6$ , соответственно (Рисунок 2, а). Использование междуоперационной и постоперационной (непосредственно перед измерением) обработки Ta-резонаторов позволило достигнуть  $Q_{iLP}$   $3,64 \times 10^6$  и  $10,09 \times 10^6$  (Рисунок 2, а). Таким образом, внутренняя добротность танталовых резонаторов на низкой мощности даже без дополнительной обработки в два раза превышает добротность аналогичных алюминиевых резонаторов, что свидетельствует о значительном снижении энергетических потерь на интерфейсах схемы и означает увеличение времени жизни кубитов с танталовым базовым слоем.

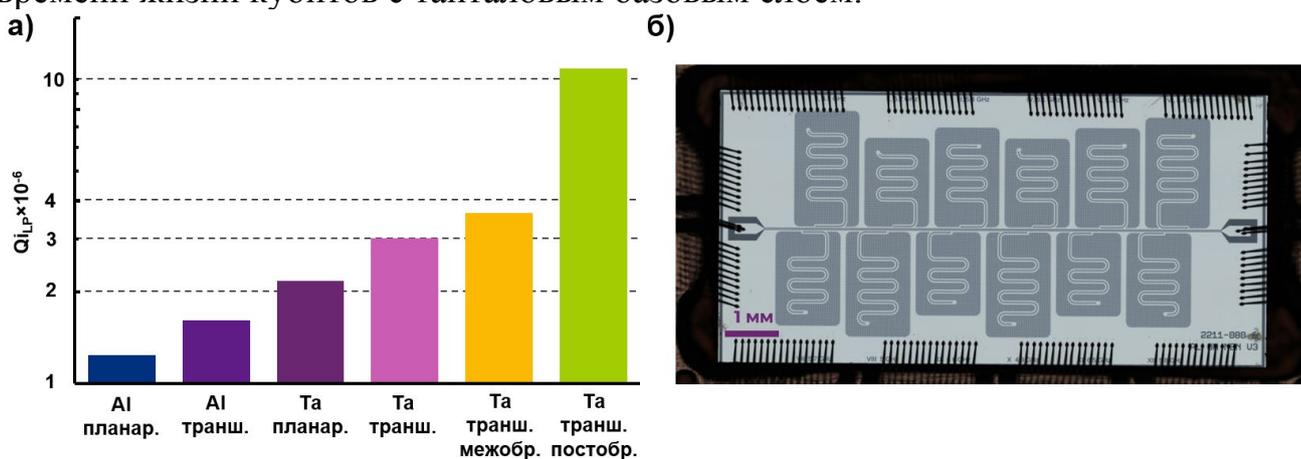


Рисунок 2. (а) Добротность при однофотонной мощности резонаторов на основе алюминия (Al) и тантала (Ta) в планарной (планар.) и траншейной (транш.) конфигурации с применением междуоперационной (межобр.) и постоперационной (постобр.) обработки. (б) Оптический снимок образца с 12 резонаторами.

Исследования показали, что плёнки  $\alpha$ -Ta на кремнии, сформированные с нагревом подложки, обладают крупнозернистой структурой с характерным размером 30 – 40 мкм (Рисунок 3, а – оптическое изображение), однако по данным АСМ шероховатость поверхности  $S_q$  невелика и составляет не более 17 Å. По данным ДОЭ (образец расположен под углом к детектору) зерна имеют ориентацию 110 по вертикальной оси (Рисунок 3, б) и произвольную ориентацию в плоскости XY (Рисунок 3, в).

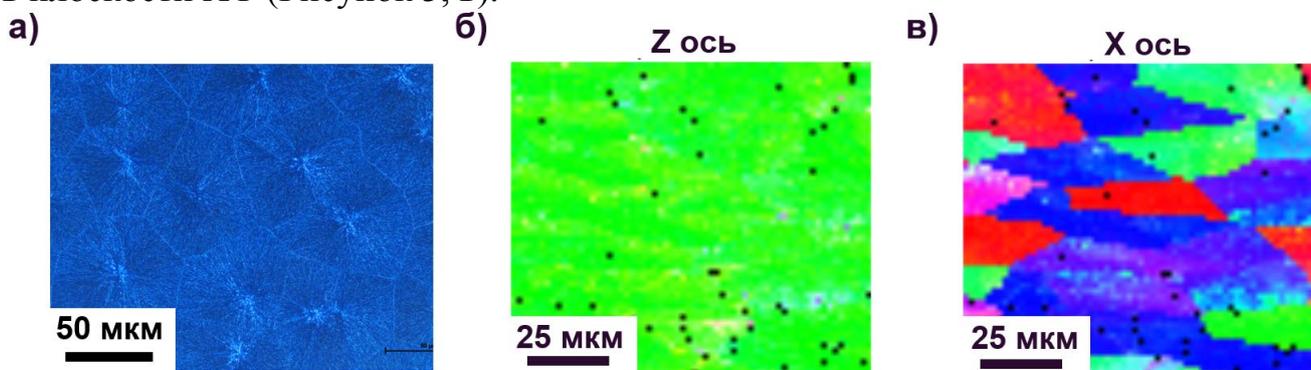


Рисунок 3. (а) Оптический снимок в тёмном поле зёрен  $\alpha$ -Ta на Si. ДОЭ-карты для плёнки  $\alpha$ -Ta на Si по оси Z (б) и X (в).

Результаты исследований показали, что формирование плёнки  $\alpha$ -Ta при нагреве подложки происходит в два этапа: первые примерно 10 нм растут в  $\beta$ -фазе с электрическим сопротивлением порядка  $150 \text{ мкОм} \times \text{см}$ , а на них точечно зарождаются области  $\alpha$ -Ta с электрическим сопротивлением порядка  $17 \text{ мкОм} \times \text{см}$  (Рисунок 4, а). При дальнейшем росте области  $\alpha$ -фазы разрастаются и при общей толщине плёнки 20 нм занимают уже всю поверхность плёнки. Наличие двух структур на поверхности плёнки толщиной 15 нм подтверждается оптической микроскопией (Рисунок 4, б), СЭМ (Рисунок 4, в) и ДОЭ (Рисунок 4, г). Молекулярное моделирование, представленное в литературе, показало, что  $\beta$ -фаза является устойчивой до определённого размера кластера. Можно предположить, что при комнатной температуре формируется нанокристаллический  $\beta$ -Ta с размером кластера, не превышающим критический, а в случае нагрева подложки снижается критический размер кластера и увеличивается размер кристаллитов Ta, в результате чего и формируется  $\alpha$ -фаза тантала. Обнаруженный механизм роста плёнки объясняет разориентированность зёрен тантала в плоскости и является значимой информацией для понимания природы фазовой селекции в тонких плёнках тантала.

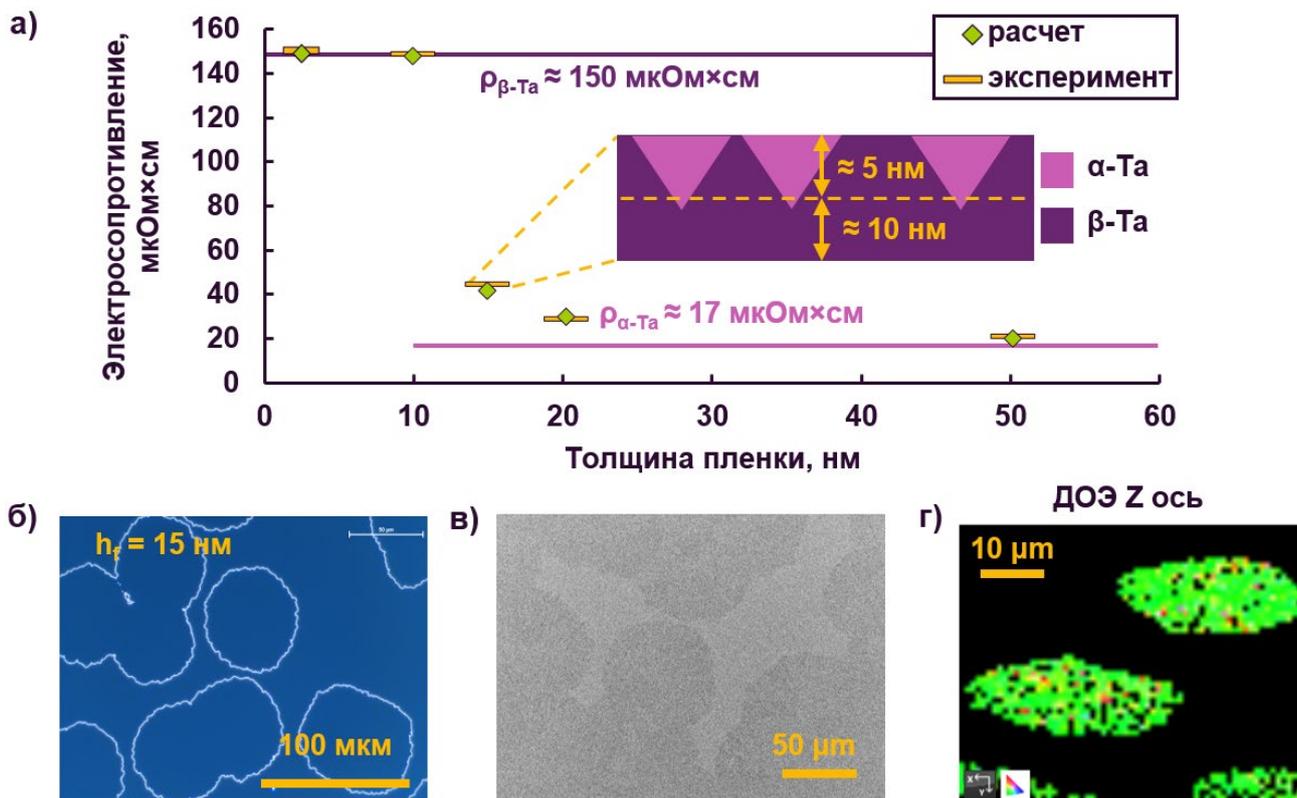


Рисунок 4. (а) Зависимость электрического сопротивления плёнок тантала от толщины. На вставке схема начального этапа роста плёнок  $\alpha$ -Ta на Si. Снимки плёнки Ta толщиной 15 нм на Si в оптический микроскоп в тёмном поле (б) и СЭМ (в), ДОЭ-карта плёнки (г).

**Глава 3** разделена на две части и посвящена разработке и экспериментальному исследованию процессов формирования тонких плёнок Nb для классических сверхпроводниковых интегральных схем. В первой части главы определены требования к тонким плёнкам ниобия для сверхпроводниковых интегральных схем

с классической логикой: шероховатость  $R_q$  менее 1,0 нм, низкие внутренние напряжения не более 300 МПа, критическая температура более 8,8 К, коэффициент остаточного сопротивления  $RRR$  более 5,0 и удельное электрическое сопротивление  $\rho$  не более 20 мкОм×см. По результатам литературного обзора были определены параметры процесса магнетронного распыления, влияющие на характеристики плёнок Nb, и как наиболее значимые выделены: рабочее давление аргона и мощность распыления. Обзор показал, что мощность распыления целесообразно максимизировать, насколько это позволяет блок питания и теплопроводность материала мишени, а рабочее давление минимизировать, оставаясь в области нулевых внутренних напряжений. Отдельно анализировались пути сохранения уровня внутренних напряжений в плёнке на протяжении всего срока службы распыляемой мишени, в результате чего был сделан вывод: постоянство внутренних напряжений в плёнках должна обеспечить фиксация мощности распыления, а не тока или напряжения. Это связано с тем, что при эрозии мишени катодное напряжение, необходимое для определенного уровня внутренних напряжений, снижается, что и обеспечивается вместе с одновременным увеличением катодного тока при фиксации мощности распыления.

Во второй части главы приводятся результаты исследования влияния параметров магнетронного распыления на характеристики плёнок Nb на подложке  $\text{SiO}_2$  и структур на их основе при комнатной и криогенной температуре (менее 10 К). Обнаружена связь между механическими, электрическими и криогенными характеристиками плёнок ниобия. Показано, что для плёнок Nb ключевым параметром магнетронного распыления является рабочее давление. При превышении некоторого критического значения рабочего давления  $p_{\text{critical}}$  внутренние растягивающие напряжения (карта напряжений на Рисунке 5, ж) начинают релаксировать (Рисунок 5, в), но при этом увеличивается шероховатость (Рисунок 5, а), электрическое сопротивление (Рисунок 5, б), уменьшается коэффициент остаточного сопротивления  $RRR$  и температура сверхпроводящего перехода  $T_c$  (Рисунок 5, г), что свидетельствует о увеличении количества структурных дефектов в тонких плёнках Nb. Можно предположить, что релаксация напряжений происходит в результате увеличения ширины границ между зёрнами плёнки, то есть перехода упругих деформаций в плёнке в пластические. Дополнительно может иметь место окисление Nb по границам зёрен после извлечения образцов из вакуумной среды, что также может быть причиной ухудшения параметров плёнок. Значения процессного давления менее  $p_{\text{critical}}$  обеспечивают высокие параметры тонких плёнок с точки зрения SFQ-схем: шероховатость  $R_q$  менее 0,8 нм, удельное электрическое сопротивление не более 20 мкОм×см, критическую температуру сверхпроводящего перехода более 8,9 К и коэффициент остаточного сопротивления более 6,4 для мощности распыления 400 Вт. Важно отметить, что при рабочем давлении менее  $p_{\text{critical}}$  указанные параметры практически не зависят от значения рабочего давления.

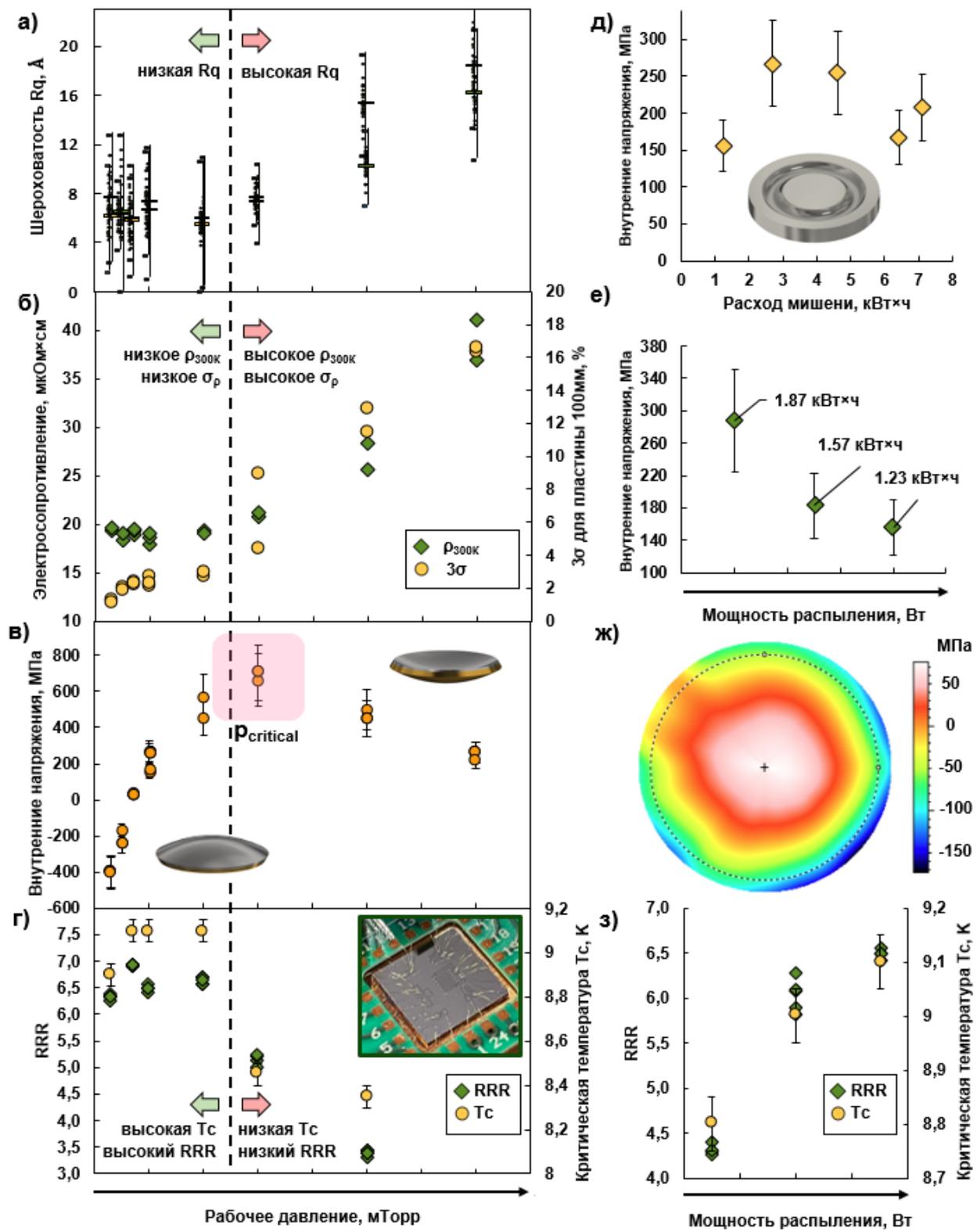


Рисунок 5. Зависимость шероховатости  $R_q$  (а), удельного электрического сопротивления (б), внутренних механических напряжений (в), коэффициента остаточного сопротивления и критической температуры (г) для тонких плёнок Nb от рабочего давления аргона при магнетронном распылении. (д) Зависимость внутренних напряжений в плёнках Nb от расхода мишени Nb. Зависимость внутренних напряжений (е), коэффициента остаточного сопротивления и критической температуры (з) для плёнок Nb от мощности распыления. (ж) Карта внутренних напряжений для 100 мм пластины с плёнкой Nb.

Мощность распыления в диапазоне от 250 до 400 Вт не оказала заметного влияния на шероховатость и электрическое сопротивление и оказала слабое влияние на внутренние напряжения (Рисунок 5, е), однако коэффициент остаточного сопротивления и критическая температура тонких плёнок Nb монотонно увеличиваются с увеличением  $P_{\text{sput}}$  (Рисунок 5, з), что может быть связано с уплотнением границ зёрен и соответствующим снижением коэффициента отражения в законе Маядаса–Шацкеса. Для оценки влияния эрозии мишени на уровень внутренних напряжений в плёнках Nb (Рисунок 5, д) были измерены внутренние напряжения в плёнках Nb, сформированных при  $P_{\text{sput}}$  400 Вт и  $p_{\text{Ar}}$  1 мТорр при расходе мишени от 1,0 до 7,0 кВт×ч (ресурс мишени 10,0 кВт×ч). Обнаружено незначительное и немонотонное изменение внутренних напряжений, на протяжении всего срока службы мишени.

**Глава 4** разделена на три части и посвящена применению кинетической модели формирования внутренних напряжений в тонких плёнках Nb для прогнозирования уровня внутренних напряжений в зависимости от рабочего давления аргона при осаждении плёнки. В первой части приведено описание кинетической модели формирования внутренних напряжений для поликристаллических тонких плёнок в случае высокоэнергичных методов осаждения, разработанной Эриком Чейсоном и другими:

$$\sigma_{ss}^{\text{sputt}} = \sigma_{\text{growth}} + \sigma_{gb}^{\text{energetic}} + \sigma_{\text{bulk}}^{\text{energetic}}, \quad (1)$$

где  $\sigma_{\text{growth}}$  – это внутренние напряжения, обусловленные формированием и уплотнением границ зёрен.  $\sigma_{gb}^{\text{energetic}}$  – это сжимающие внутренние напряжения, обусловленные уплотнением границ зёрен в результате воздействия высокоэнергетических частиц.  $\sigma_{\text{bulk}}^{\text{energetic}}$  – это сжимающие внутренние напряжения, обусловленные генерацией и аннигиляцией точечных дефектов в объёме зерна в результате воздействия высокоэнергетических частиц.

В исходной модели слагаемые  $\sigma_{gb}^{\text{energetic}}$  и  $\sigma_{\text{bulk}}^{\text{energetic}}$  рассчитываются с использованием коэффициентов  $A_0$ ,  $B_0$  и  $l_0$ , которые находятся в линейной зависимости от рабочего давления  $p$ :

$$A_0 = A^* \left(1 - \frac{p}{p_0}\right), \quad (2)$$

$$B_0 = B^* \left(1 - \frac{p}{p_0}\right), \quad (3)$$

$$l_0 = l^* \left(1 - \frac{p}{p_0}\right). \quad (4)$$

Во второй части главы выполнена аппроксимация экспериментальных данных исходной кинетической моделью. Были экспериментально определены входные параметры модели: рабочее давление, значение внутренних напряжений, размер зерна плёнки (Рисунок 6, а) и скорость осаждения (Рисунок 6, б). Модель предсказывает (Рисунок 7, а) наличие максимума внутренних напряжений, подтвержденного экспериментом, и переход внутренних напряжений в область сжатия при дальнейшем увеличении процессного давления, что не имеет

физической причины и не подтверждается опубликованными экспериментальными данными.

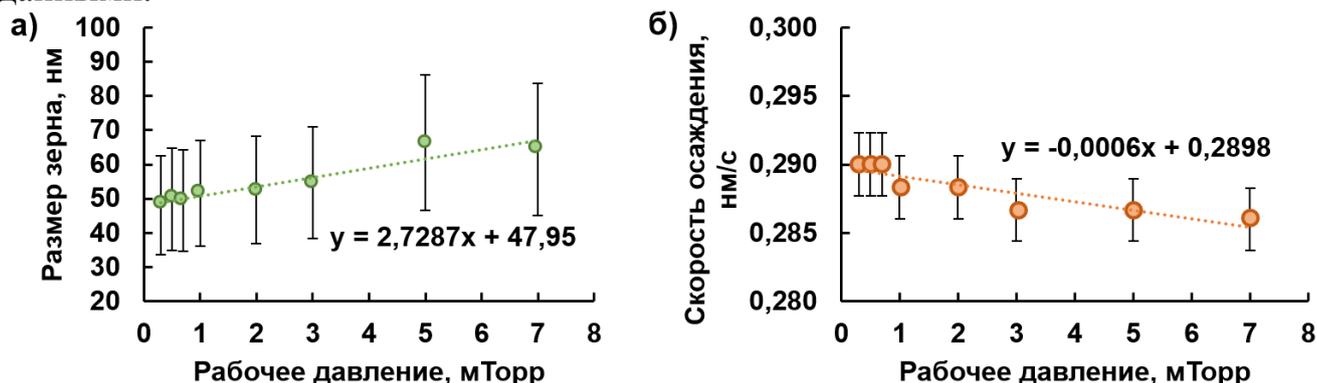


Рисунок 6. Зависимость среднего значения размера зерна (а) и скорости осаждения (б) Nb от рабочего давления

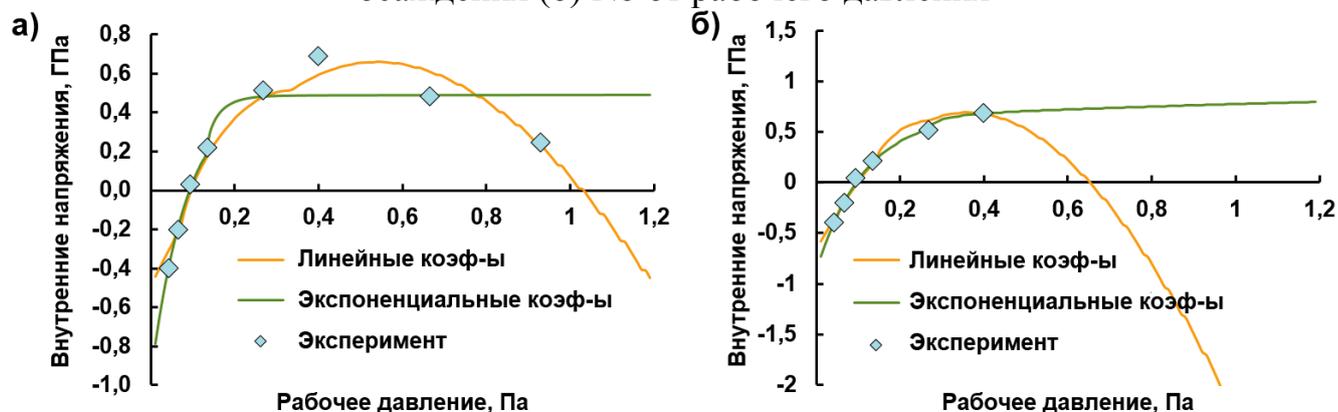


Рисунок 7. Результаты аппроксимации кинетической моделью экспериментальной зависимости внутренних напряжений в плёнках Nb от рабочего давления  $p_{Ag}$  для линейных (оранжевая линия) и нелинейных (зелёная линия) коэффициентов для 8 точек (а) и 6 точек (б).

В третьей части главы предложено уточнение кинетической модели, предполагающее замену линейной зависимости от  $p$  коэффициентов модели, отражающих высокоэнергичное воздействие на растущую плёнку, на показательную зависимость с основанием меньше единицы, так как влияние высокоэнергичных слагаемых кинетической модели должно стремиться к нулю при превышении  $p_{critical}$ :

$$A_0 = A^* \times p^* \left(\frac{p}{p_0}\right), \quad (5)$$

$$B_0 = B^* \times p^* \left(\frac{p}{p_0}\right), \quad (6)$$

$$l_0 = l^* \times p^* \left(\frac{p}{p_0}\right). \quad (7)$$

Замена коэффициентов устраняет прогнозирование перехода внутренних напряжений в область сжатия при дальнейшем увеличении  $p$  (Рисунок 7, б), но не описывает релаксацию напряжений. Однако, экспериментальные данные из глав 2 и 3 показывают, что при значениях рабочего давления выше  $p_{critical}$  целостность структуры плёнки нарушается, в результате чего и происходит релаксация внутренних напряжений, поэтому использование кинетической модели в этом

диапазоне  $p$  некорректно (две последние точки на графике Рисунок 7, а). Можно сказать, что при значениях рабочего давления выше  $p_{critical}$  плёнка фактически перестаёт быть сплошной. Таким образом, зависимость внутренних напряжений от  $p$  до значения  $p_{critical}$  (Рисунок 7, б) целесообразно описывать с использованием нелинейных показательных коэффициентов с основанием меньше единицы, так как это в большей степени соответствует физике процесса магнетронного распыления и позволяет снизить среднюю ошибку аппроксимации с 20 до 8 %.

Работа выполнена в Научно-образовательном центре «Функциональные Микро/Наносистемы» МГТУ им. Н.Э. Баумана.

## ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

1. Увеличение добротности квантовых сверхпроводниковых схем возможно осуществить путём замены классических материалов базового слоя, алюминия и ниобия, на более химически стойкие. Наиболее перспективным на данный момент является тантал. Для изготовления классических сверхпроводниковых интегральных схем с рабочими частотами более 20 ГГц и количеством сверхпроводящих слоёв более 4 необходима технология формирования ненапряжённых тонких плёнок ниобия с низкой шероховатостью и высокими значениями RRR и  $T_c$ .

2. При осаждении тонких плёнок тантала предобработка кремниевых подложек, направленная на удаления адсорбатов с поверхности, не позволяет формировать  $\alpha$ -Ta без нагрева подложки. Таким образом, нагрев является энергетическим условием формирования  $\alpha$ -фазы тантала, а минимальная температура нагрева составляет 450 °С. С точки зрения чистоты  $\alpha$ -фазы и снижения шероховатости допустимо использовать рабочее давление распыления в широком диапазоне от 0,3 до 9,0 мТорр, а температура подложки не должна превышать 600 °С.

3. Плёнка  $\alpha$ -Ta на кремнии состоит из крупных зёрен со средним размером порядка 30 – 40 мкм с ориентацией 110 по вертикальной оси и произвольной ориентацией в горизонтальной плоскости. Формирование плёнки  $\alpha$ -Ta при нагреве подложки происходит в два этапа: первые 10 нм растут в  $\beta$ -фазе с электрическим сопротивлением порядка 150 мкОм $\times$ см, на которых точечно зарождаются области  $\alpha$ -Ta с электрическим сопротивлением порядка 17 мкОм $\times$ см. При дальнейшем росте плёнки области  $\alpha$ -фазы разрастаются и при общей толщине 20 нм занимают всю поверхность плёнки, при этом слой  $\beta$ -Ta не претерпевает перекристаллизацию.

4. Использование кинетической модели формирования внутренних напряжений в тонких плёнках для Nb при значениях рабочего давления выше критического некорректно, так как целостность структуры плёнки нарушается. Использование показательных коэффициентов с основанием меньше единицы вместо линейных в кинетической модели в большей степени соответствует физике процесса магнетронного распыления, так как влияние высокоэнергетических слагаемых модели должно асимптотически стремиться к нулю. Уточнение модели позволило снизить среднюю ошибку аппроксимации экспериментальных данных с 20 до 8 %.

5. Зависимость внутренних напряжений в тонких плёнках Nb от рабочего давления имеет экстремум, которому соответствует критическое рабочее давление. Значения рабочего давления менее критического обеспечивают высокие параметры

тонких плёнок: шероховатость  $R_q$  менее 0,8 нм, удельное электрическое сопротивление не более 20 мкОм×см, критическая температура сверхпроводящего перехода более 8,9 К и коэффициент остаточного сопротивления более 6,4 для мощности распыления 400 Вт. Использование рабочего давления более критического приводит к значительному ухудшению структурных и электрических параметров плёнок Nb. Коэффициент остаточного сопротивления и критическая температура тонких плёнок Nb монотонно увеличиваются от 4,3 до 6,5 и от 8,8 до 9,1 К, соответственно, с увеличением мощности распыления от 250 до 400 Вт.

### **СПИСОК РАБОТ, ОПУБЛИКОВАННЫХ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ**

По теме работы опубликованы 8 научных трудов в научно-технических журналах, рецензируемых Web of Science и Scopus – 8, общим объемом 7,62 п.л./2,07 п.л.:

1. High-Q trenched aluminum coplanar resonators with an ultrasonic edge microcutting for superconducting quantum devices / E.V. Zikiy [et al.] // Scientific Reports. 2023. Т. 13. №. 1. С. 15536. (0,58 п.л./ 0,25 п.л.). Соискателем разработан процесс изготовления сверхпроводниковых резонаторов и измерена их добротность.

2. High fidelity two-qubit gates on fluxoniums using a tunable coupler / E.V. Zikiy [et al.] // npj Quantum Information. 2022. Т. 8. №. 1. С. 130. (1,04 п.л./ 0,2 п.л.). Соискатель участвовал в разработке процесса формирования базового слоя квантовых схем.

3. Optimization of shadow evaporation and oxidation for reproducible quantum Josephson junction circuits / E.V. Zikiy [et al.] // Scientific Reports. 2023. Т. 13. №. 1. С. 4174. (0,69 п.л./ 0,29 п.л.). Соискатель участвовал в разработке процесса формирования базового слоя и джозефсоновских переходов для квантовых схем.

4. Coupler microwave-activated controlled-phase gate on fluxonium qubits / E.V. Zikiy [et al.] // PRX Quantum. 2023. Т. 4. №. 4. С. 040321. (1,27 п.л./ 0,22 п.л.). Соискатель участвовал в разработке процесса формирования базового слоя квантовых схем.

5. Improving Josephson junction reproducibility for superconducting quantum circuits: Junction area fluctuation / E.V. Zikiy [et al.] // Scientific Reports. 2023. Т. 13. №. 1. С. 6772. (0,69 п.л./ 0,2 п.л.). Соискатель участвовал в разработке процесса формирования базового слоя и джозефсоновских переходов для квантовых схем.

6. Broadband SNAIL parametric amplifier with microstrip impedance transformer / E.V. Zikiy [et al.] // Applied Physics Letters. 2022. Т. 121. №. 23. С. 232601. (0,81 п.л./ 0,3 п.л.). Соискатель участвовал в разработке процесса формирования базового слоя параметрических усилителей.

7. Deep multilevel wet etching of fused silica glass microstructures in BOE solution / E.V. Zikiy [et al.] // Scientific Reports. 2023. Т. 13. №. 1. С. 5228. (1,04 п.л./ 0,26 п.л.). Соискателем разработан процесс осаждения маскирующей тонкой пленки и проведен анализ данных.

8. Toward highly efficient multimode superconducting quantum memory / E.V. Zikiy [et al.] // Physical Review Applied. 2023. Т. 19. №. 3. С. 034011. (1,5 п.л./ 0,35 п.л.). Соискатель участвовал в разработке процесса формирования базового слоя квантовой памяти.