不同溅射条件对超薄外延氮化铌薄膜超导性能的影响

汪潇涵^{1,2†}, 何倩眉^{3†}, 芦政^{1,2}, 金韬⁴, 郑分刚^{1,2*}, 熊杰³, 邹贵付^{1,2*}

1. 苏州大学物理与科学技术学院, 苏州 215006;

2. 苏州大学能源学院, 苏州 215006;

3. 电子科技大学电子薄膜与集成器件国家重点实验室, 成都 610054;

4. 山东大学(威海)空间科学与物理学院, 威海 264200

† 同等贡献

* 联系人, E-mail: zhfg@suda.edu.cn; zouguifu@suda.edu.cn

2019-04-11 收稿, 2019-05-10 修回, 2019-05-16 接受, 2019-06-27 网络版发表

国家重点基础研究发展计划(2015CB358600)、国家自然科学基金(21671141)、江苏高校优势学科建设工程项目(PAPD)和苏州纳米科技协同创新中心和江苏省碳基功能材料与器件重点实验室开放项目资助

摘要 氮化铌(NbN)由于其较高的超导转变温度、较窄的转变宽度以及良好的稳定性一直被广泛地应用于低温超导器件中. 因此, 生长高质量的超导NbN薄膜是制备高性能薄膜超导器件的关键及难点. 本文主要介绍了利用磁控溅射法在氧化镁(MgO)<100>基底上生长厚度为5 nm的超薄超导外延NbN薄膜, 并系统分析了溅射参数对薄膜性能的影响. 实验结果表明, 在合适的氮氩比或功率下, 高真空、高溅射温度、低工作气压与NbN薄膜超导转变温度成正相关. 采用综合物性测量系统(physical property measurement system, PPMS)进行电学分析, 所制备的NbN薄膜超导最高转变温度为12.5 K. 该工作为进一步研究超薄NbN薄膜的生长提供了理论指导, 也为后期在其他基底上制备NbN超导器件提供了基础.

关键词 磁控溅射, 外延生长, 超薄薄膜, 超导, 氮化铌

近年来, 氮化铌(niobium nitride, NbN)薄膜因其优异的超导性能以及良好的稳定性被大量研究. 同时, NbN作为低温超导体, 因其独特的物理机制被广泛地应用于多种超导电子器件中, 如太赫兹波检测的热电子辐射热测量计(hot-electron-bolometer, HEB)混频器^[1]、超导量子干涉装置(superconducting quantum interference devices, SQUID)^[2~4]和快速单通量量子(rapid single flux quantum, RSFQ)逻辑电路^[3]等. 继2001年Gol'tsman利用5 nm厚的超薄超导NbN薄膜制备出宽度约200 nm的纳米线, 实现了对近红外波段的单光子探测(superconducting nanowire single photon detectors)^[5]. 至此, 研究者对超薄NbN薄膜进行了深入的研究, 同时

对高质量超薄超导NbN薄膜的需求也进一步加剧. 因此, 研究NbN薄膜的生长机理以及获得高质量的超薄超导NbN薄膜是目前所需要解决的问题^[6].

高效的制膜方法是制备出高质量超导薄膜的关键. 随着对薄膜研究的深入, 薄膜制备技术也日益完善. 迄今为止, 超导薄膜的制备方法有化学气相沉积法(chemical vapor deposition, CVD)^[7]、聚合物辅助沉积法(polymer assisted deposition, PAD)^[8]、磁控溅射法(magnetron sputtering)^[9~12]. 化学法制备薄膜工艺较简单, 但成膜质量较差、厚度不可控等缺点, 致使不易于构建高精度的纳米器件; 物理法所制备的薄膜致密性好, 且可以实现厚度调控, 便于应用, 因此得到更多的关注.

引用格式: 汪潇涵, 何倩眉, 芦政, 等. 不同溅射条件对超薄外延氮化铌薄膜超导性能的影响. 科学通报, 2019, 64: 2127~2133

Wang X H, He Q M, Lu Z, et al. Influence of different sputtering conditions on superconductivity of ultra-thin epitaxial niobium nitride film (in Chinese). Chin Sci Bull, 2019, 64: 2127~2133, doi: 10.1360/N972019-00314

目前研究表明, NbN薄膜的超导转变温度(critical temperature, T_c)与薄膜厚度呈正相关^[2,13,26]. 随着厚度的降低, 薄膜超导转变温度也会逐渐降低, 而目前生长5 nm左右超薄NbN薄膜的超导转变温度在12 K左右^[14~16]. 因此, 制备高超导转变温度的超薄NbN薄膜依旧是目前需要解决的难题.

本文利用磁控溅射法在氧化镁(MgO)基底上生长厚度为5 nm的超薄超导外延NbN薄膜, 并系统分析了溅射参数对NbN薄膜超导性能的影响. 通过综合物性测量系统(physical property measurement system, PPMS)对所生长的NbN薄膜进行电学表征, 测试在不同溅射条件下生长的NbN薄膜超导性能的差异, 并分析了磁控溅射NbN薄膜所需的主要条件, 以及影响NbN薄膜性能的主要参数. 研究表明, 在合适的氮氩比或功率的情况下, 高真空、高溅射温度、低工作压力在一定程度上能够提高NbN薄膜超导转变温度, 为生长超薄NbN薄膜提供了实验参照, 同时也为今后构建超薄且高的超导转变温度NbN薄膜纳米器件提供了基础.

1 实验

本文利用磁控溅射技术在高真空舱内进行超导NbN薄膜的生长. 电子在电场 E 的作用下与舱体内气体分子发生碰撞, 电离出正离子和电子, 从而使正离子在电场的作用下轰击靶材表面, 进而逸出的靶原子与电离的 N^- 反应在基片成膜^[27]. 靶材直径为3 in(1 in=2.54 cm), 纯度达99.999%, 厚度为3 mm, 靶材与基片相距8 cm, 呈45°夹角(基底在上, 靶材在下). 采用厚度为0.5 mm的单抛MgO<100>作为基底, 溅射前将基底置于丙酮、无水乙醇中超声以清除基底表面杂质; 然后再将基片置于舱体内的样品架上, 并以5 r/min逆时针旋转; 通过给基底加热, 在氩气与氮气的环境下溅射NbN薄膜.

薄膜表面形貌通过扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM, Hitachi SU8010)和原子力显微镜(atomic force microscope, AFM, Bruker Dimension Icon)来表征. 利用透射电子显微镜(transmission electron microscope, TEM, FEI TECNAI G2 F20 200KV)来分析薄膜的微结构, 由X射线衍射仪(X-ray diffractometer, XRD, Bruker D8 Advance)和X射线光电子能谱分析(X-ray photoelectron spectroscopy, XPS, THERMO FISHER)来确定薄膜的成分. 薄膜的超导性能由综合

物性测量系统(physical property measurement system, PPMS, Quantum Design PPMS-9)进行测试与分析.

2 结果与讨论

溅射NbN薄膜的条件为: 真空度控制在 4.5×10^{-5} Pa, 功率为150 W, 工作气压为0.18 Pa, 氮氩比保持5:1, 气体流量为30 sccm:6 sccm(sccm: 标准毫升/min), 溅射时间为120 s. 图1(a)为所制备薄膜的SEM图, 从图中可以看到, 薄膜表面十分致密且没有裂痕, 薄膜晶粒分布十分均匀. 通过AFM对薄膜表面进行分析, 由图1(b)看出, 其在5 μ m范围内的粗糙度 R_a 为0.116 nm, 可知薄膜表面平整且致密性良好. 利用TEM对MgO基底上生长的NbN薄膜进行详细结构分析, 图1(c), (d)为薄膜横截面高分辨率透射电子显微镜(HRTEM)图. 从图中可以看到, 薄膜与基底之间明暗对比度大, 界面处清晰. NbN薄膜平均厚度约 5.751 ± 0.325 nm, 其中薄膜表面的C膜是制备TEM样品过程中为了保护薄膜所沉积的. 图1(d)为高倍率的HRTEM图, 从图中可以观察到, NbN薄膜与MgO基底原子排列十分整齐, 其中薄膜原子间距为0.219 nm, 对应NbN(200)的晶面. 对MgO基底与NbN薄膜进行选区电子衍射(SAED), 结果表明, 所生长的为外延准单晶立方相氮化铌薄膜. 仔细观察可以看出, 与基底交界处生长的薄膜原子排列有些许不整齐. 究其原因是: MgO基底晶格常数(0.421 nm)与NbN薄膜晶格常数(0.446 nm)不一致. 在接近基底界面的薄膜平面 X , Y 方向的原子由于应力的作用会使原子间距被进一步压缩, 致使 Z 方向的薄膜原子层间距拉大, 这也为整体超薄薄膜的高质量外延生长提供了基础. 而且, 从图中也可以看出, 薄膜最上层表面十分平整, 进一步证实了薄膜致密且表面粗糙度低.

为了进一步确定薄膜的宏观取向和晶体结构的关系, 我们对薄膜进行了 2θ - Ω 扫描和方位角离轴 ϕ 扫描的高分辨率X射线衍射(HR-XRD)分析. 图2(a)显示了MgO基底与NbN薄膜的 2θ - Ω 扫描图谱, 经过对比可知, 图中两个峰位分别代表了立方相结构的NbN(200)晶面(PDF No. 71-0162)和MgO(200)晶面(PDF No. 89-7746). 分析可知, NbN薄膜(200)的半峰宽为 0.1479° , 展现了良好的结晶性. 而基底旁的小峰可能是HR-XRD测试过程中引入的钨灯丝的峰. 为了研究基底与超薄薄膜的外延关系, 通过旋转薄膜样品表面来实现超薄薄膜的 ϕ 扫描, 测试结果如图2(b)所示. 结果表明, 有4个衍射峰出现在 360° 中, 即NbN衍射峰4次对称间距为 90° , 表明生长

图 1 (网络版彩色)NbN薄膜表面的SEM图(a), AFM图(b)和HRTEM图(c), (d)

Figure 1 (Color online) SEM top-view image (a), AFM image (b), and the cross-section HRTEM images (c), (d) of NbN film

图 2 (网络版彩色)在MgO基底上生长NbN薄膜的HRXRD图(a)和NbN薄膜的 ϕ 扫描(b); Nb 3d(c)和N 1s(d)的XPS图

Figure 2 (Color online) HRXRD image of NbN film on MgO substrate (a) and ϕ scan image of NbN film (b); XPS images of Nb 3d (c) and N 1s (d)

的NbN薄膜为立方相的薄膜. 该结果与薄膜所测试的HRTEM数据十分吻合. 此外, 薄膜样品中Nb 3d与N 1s的结合能由XPS测定, 结果如图2(c), (d)所示. 在图2(c)中, 结合能在203.8和206.8 eV附近的强峰表示Nb-N键, 而结合能在209.4 eV附近的峰为Nb-O键^[17,18], 这是由薄膜暴露在大气中的表面被部分氧化所造成的^[5]. 同样, 在N 1s结合能谱(图2(d))397.4 eV附近的强峰位为N元素在NbN里的键位, 与文献^[19]报道的结果符合.

为了研究不同溅射参数对NbN薄膜超导性能的影响, 本文主要用控制变量法逐一研究, 并利用PPMS对薄膜性能进行超导性能分析. 利用点焊机在薄膜表面焊接4个等间距的电极作为PPMS测试电极, 测试结果如图3所示. 图3(a)显示了氮氩比对薄膜超导性能的影响, 从图中可以看出, 氮氩比为40 sccm:200 sccm时, 薄膜的超导性能最高, 其超导转变温度约9.3 K; 而氮氩比分别为20 sccm:200 sccm和70 sccm:200 sccm时, 薄膜超导转变温度分别为5.1和6.3 K. 当氮氩比较低时, 通入氮气的量太少, 此时, 溅射主要是金属模式. 氮氩比太大时, 使得通入氮气的量太大, 反而会导致最后溅射的薄膜中Nb⁺与N⁻比例不是1:1^[20]. 不同的氮氩比会直接影响所制备薄膜的晶格结构, 不同晶格结构的NbN薄膜性能也存在很大差异. 因此, 适宜的氮氩比是溅射高

质量超导薄膜的前提. 功率对薄膜超导性能的趋势图如图3(b)所示, 从图中可以看出, 当功率约为150 W时, 薄膜的超导性能较好, 其超导转变温度约9.6 K. 究其原因可知, 功率越大, 所轰击的靶材原子能量越大, 由于逸出的原子能量过高, 对衬底上已经沉积的薄膜产生一定的轰击, 从而产生更多的缺陷. 但若功率过小, 原子所具备的能量过小导致其在衬底上的迁移速率过低, 易使薄膜生长得不平整进而影响其性能. 同时, 过小的功率会使靶材原子沉积速率低, 在溅射过程中容易受到舱体其他杂质的影响, 进而会影响薄膜沉积质量^[21]. 温度对薄膜超导性能的影响如图3(c)所示, 随着温度的逐渐增大, 薄膜的超导性能逐渐提升, 当温度为550°C时, 薄膜的超导转变温度 T_c 约10.2 K(而550°C是仪器所能承受的最高温度). 当衬底温度较高时, 原子扩散和迁移速率较快, 最终形成的薄膜较为平整. 而当衬底温度过低时, 薄膜的临界核尺寸小, 在沉积的过程中会有新核不断产生. 同时, 原子在衬底表面的迁移速率低, 内部晶粒生长受抑制, 使晶粒内部缺陷密度增大, 影响薄膜质量, 进而影响薄膜的电学性能^[21,22]. 温度为室温时, 薄膜临界温度为7.5 K. 图3(d)为真空度对薄膜超导性能影响, 真空度为 4.5×10^{-5} Pa时, 薄膜超导转变温度为11.8 K(4.5×10^{-5} Pa是仪器的极限真空度). 随着真空度的逐渐降低, 生长的薄膜性能会逐渐降低; 真空度为

图3 (网络版彩色)不同参数对薄膜超导性能的影响. (a) 氮氩比; (b) 功率; (c) 温度; (d) 真空度; (e) 工作气压; (f) 气体流速
Figure 3 (Color online) Effect of sputtering parameters on superconducting properties of thin films. (a) Nitrogen to argon ratio; (b) power; (c) temperature; (d) vacuum; (e) pressure; (f) gas flow rate

表 1 不同溅射参数下的薄膜超导转变温度

Table 1 T_c under different sputtering parameters

氩氮比	功率(W)	温度(°C)	真空度(Pa)	工作气压(Pa)	气体流速(sccm)	超导转变宽度(K)	T_c (K)
1:5	210	400	8.5×10^{-5}	0.34	50:10	0.159	9.3
1:5	150	400	8.5×10^{-5}	0.34	50:10	0.167	9.6
1:5	150	550	8.5×10^{-5}	0.34	50:10	0.351	10.2
1:5	150	550	4.5×10^{-5}	0.34	50:10	0.274	11.8
1:5	150	550	4.5×10^{-5}	0.18	50:10	0.169	12.1
1:5	150	550	4.5×10^{-5}	0.18	30:6	0.464	12.5

8.5×10^{-5} Pa时, 薄膜超导转变温度为9.4 K. 在高真空中, 舱内的杂质分子(如水分子, 氧分子)会越来越少, 进而在成膜过程中带入的杂质会越来越少, 从而会提高薄膜的生长质量, 进而提高薄膜的超导性能^[23]. 图3(e)为工作气压对薄膜性能的趋势图, 通过数据分析表明, 工作气压为0.18 Pa时, 薄膜电学性能最佳, 其超导转变温度为12.1 K, 0.18 Pa是仪器能起辉的最低气压值. 溅射气压过大时, 原子的平均自由程小, 原子间发生碰撞的概率大, 使得沉积速率降低, 致使原子达到基片表面时, 能量损失过多, 在基片上的迁移能力变小, 从而影响薄膜性能. 在低压下, 原子的平均自由程大, 原子间发生碰撞的概率大大减小, 到达基片表面时的迁移能力大, 在一定程度上有利于薄膜成型^[24]. 气体流速对薄膜性能的影响如图3(f)所示, 当氩氮比保持为5:1, 气体流量为30 sccm:6 sccm时, 薄膜性能最佳, 其转变温度为12.5 K(而30 sccm:6 sccm的气体流量是能起辉的最低流速比). 这是因为气体流速越大, 单位时间内能够电离出的 Ar^+ 较多, 致使逸出的靶材原子也越多, 使得碰撞概率增大, 则沉积速率降低, 进而会影响薄膜质

量^[25]. 具体的实验参数如表1所示. 通过以上分析可知, 当真空度为 4.5×10^{-5} Pa, 温度为550°C, 功率为150 W, 工作气压为0.18 Pa, 氩氮比保持5:1, 流速为30 sccm:6 sccm时, 所制备的NbN薄膜性能最佳, 其临界温度 T_c 约12.5 K.

3 结论

通过系统研究发现, 当控制真空度为 4.5×10^{-5} Pa, 功率为150 W, 工作气压为0.18 Pa, 氩氮比保持为5:1, 气体流量为30 sccm:6 sccm时, 在MgO基底上能够生长出超导转变温度 T_c 为12.5 K, 且厚度约5 nm的超薄NbN超导薄膜. 测试结果表明, 薄膜致密性好且平整度十分高, 其粗糙度 Ra 为0.116 nm. HRTEM结果表明, 生长的薄膜为准单晶结构, 薄膜与基底分界处十分明显, 且原子沿(200)晶向整齐排列. HRXRD和 ϕ 扫描分析结果表明, 所制备的NbN薄膜与单晶MgO基底具有良好的外延关系. 同时, 讨论并分析了溅射参数对薄膜超导性能的影响, 为今后NbN薄膜在超导纳米器件中的应用打下重要基础.

参考文献

- Shurakov A, Lobanov Y, Goltzman G. Superconducting hot-electron bolometer: From the discovery of hot-electron phenomena to practical applications. *Supercond Sci Technol*, 2016, 29: 023001
- Han S, Yu Y, Chu X, et al. Time-resolved measurement of dissipation-induced decoherence in a Josephson junction. *Science*, 2001, 293: 1457–1459
- Kang L, Wu P H, Sh J R, et al. Fabrication and characterization of NbN, AlN and NbN/AlN/NbN on MgO substrates. *Supercond Sci Technol*, 2003, 16: 1417–1421
- Liu Q S, Wang H W, Zhang Q Y, et al. All-NbN DC-SQUID magnetometer based on NbN/AlN/NbN Josephson junctions. *IEEE Trans Appl Supercon*, 2017, 27: 1600204
- Gol'tsman G N, Okunev O, Chulkova G, et al. Picosecond superconducting single-photon optical detector. *Appl Phys Lett*, 2001, 79: 705–707
- Kang L, Jin B B, Liu X Y, et al. Suppression of superconductivity in epitaxial NbN ultrathin films. *J Appl Phys*, 2011, 109: 033908
- Nagai M, Nakauchi R, Ono Y, et al. CVD preparation of alumina-supported niobium nitride and its activity for thiophene hydrodesulfurization. *Catal Today*, 2000, 57: 297–304

- 8 Zou G, Jain M, Zhou H, et al. Ultrathin epitaxial superconducting niobium nitride films grown by a chemical solution technique. *Chem Commun*, 2008, 8: 6022–6024
- 9 Zhang W J, Li H, You L X, et al. Superconducting nanowire single-photon detector with a system detection efficiency over 80% at 940-nm Wavelength. *IEEE Photon J*, 2016, 8: 4500908
- 10 Chang H W, Wang C L, Huang Y R, et al. Growth and characterization of few unit-cell NbN superconducting films on 3C-SiC/Si substrate. *Supercond Sci Technol*, 2017, 30: 115010
- 11 Marsili F, Gaggero A, Li L H, et al. High quality superconducting NbN thin films on GaAs. *Supercond Sci Technol*, 2009, 22: 095013
- 12 Saraswat G, Gupta P, Bhattacharya A, et al. Highly oriented, free-standing, superconducting NbN films growth on chemical vapor deposited graphene. *APL Mater*, 2014, 2: 056103
- 13 Semenov A, Günther B, Böttger U, et al. Optical and transport properties of ultrathin NbN films and nanostructures. *Phys Rev B*, 2009, 80: 054510
- 14 Zhang L, Yan X, Jiang C, et al. SNSPDs on a magnesium fluoride substrate for high system efficiency and ultra-wide band. *IEEE Photon Technol Lett*, 2016, 28: 2522–2525
- 15 Shiino T, Shiba S, Sakai N, et al. Improvement of the critical temperature of superconducting NbTiN and NbN thin films using the AlN buffer layer. *Supercond Sci Technol*, 2010, 23: 045004
- 16 Krause S, Meledin D, Desmaris V, et al. Epitaxial growth of ultra-thin NbN films on $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ buffer-layers. *Supercond Sci Technol*, 2014, 27: 065009
- 17 Gao B, Xiao X, Su J, et al. Synthesis of mesoporous niobium nitride nanobelt arrays and their capacitive properties. *Appl Surf Sci*, 2016, 383: 57–63
- 18 Cui H, Zhu G, Liu X, et al. Niobium nitride Nb_4N_5 as a new high-performance electrode material for supercapacitors. *Adv Sci*, 2015, 2: 1500126
- 19 Ivashchenko V I, Scrynsky P L, Lytvyn O S, et al. Investigation of NbN and Nb-Si-N coatings deposited by magnetron sputtering. *Acta Phys Pol A*, 2015, 128: 949–953
- 20 Du N, Hao L, Liu X P, et al. Effect of nitrogen to argon ratio on microstructure and optical properties of AlN_x films (in Chinese). *Acta Energ Sol Sin*, 2011, 32: 1710–1713 [杜森, 郝雷, 刘晓鹏, 等. 氮氩比对 AlN_x 薄膜微观结构与光学性质的影响. 太阳能学报, 2011, 32: 1710–1713]
- 21 Wang B, Wei S C, Wang Y J, et al. Research progress in preparation of titanium dioxide thin films by magnetron sputtering (in Chinese). *Surface Technol*, 2018, 47: 257–269 [王博, 魏世丞, 王玉江, 等. 磁控溅射技术制备二氧化钛薄膜研究进展. 表面技术, 2018, 47: 257–264]
- 22 Shi X W, Song K L, Cui L B, et al. Effect of temperature on optical properties of magnetron sputtered titanium nitride films (in Chinese). *Vacuum*, 2013, 50: 18–21 [史新伟, 宋开兰, 崔立斌, 等. 温度对磁控溅射氮化钛薄膜光学性能的影响. 真空, 2013, 50: 18–21]
- 23 Tao L C, Fan Z J, Liu Y, et al. Effect of magnetron sputtering parameter variation on superconducting characteristics of bismuth film (in Chinese). *China Electric Power Educat*, 2011, 15: 179–180 [陶兰初, 樊振军, 刘育, 等. 磁控溅射参数变化对铋膜超导特性的影响. 中国电力教育, 2011, 15: 179–180]
- 24 Cao D F, Wan X B, Xing P F, et al. Effect of working pressure on DC magnetron sputtering Mo film (in Chinese). *Surface Technol*, 2013, 42: 71–74 [曹德峰, 万小波, 邢丕峰, 等. 工作气压对直流磁控溅射Mo薄膜的影响. 表面技术, 2013, 42: 71–74]
- 25 Wang D Q, Yang F S, Xu X P, et al. Study on Nitrogen-argon gas flow ratio of magnetron sputtering silicon-based AlN thin films (in Chinese). *Piezoelectr Acoustoopt*, 2011, 33: 248–250 [王代强, 杨发顺, 徐希斌, 等. 磁控溅射硅基AlN薄膜的氮-氩气体流量比研究. 压电与声光, 2011, 33: 248–250]
- 26 Zhang J J, Su X, Zhang L, et al. Improvement of the superconducting properties of NbN thin film on single-crystal silicon substrate by using a TiN buffer layer. *Supercond Sci Technol*, 2013, 26: 045010
- 27 Kelly P J, Arnell R D. Magnetron sputtering: A review of recent developments and applications. *Vacuum*, 2000, 56: 159–172

Summary for “不同溅射条件对超薄外延氮化铌薄膜超导性能的影响”

Influence of different sputtering conditions on superconductivity of ultra-thin epitaxial niobium nitride film

Xiaohan Wang^{1,2†}, Qianmei He^{3†}, Zheng Lu^{1,2}, Tao Jin⁴, Fengang Zheng^{1,2*}, Jie Xiong³ & Guifu Zou^{1,2*}

¹ School of Physical Science and Technology, Soochow University, Suzhou 215006, China;

² College of Energy, Soochow University, Suzhou 215006, China;

³ State Key Laboratory of Electronic Thin Film and Integrated Devices, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 610054, China;

⁴ School of Space Science and Physics, Shandong University, Weihai 264200, China

† These authors contributed equally to this work

* Corresponding authors, E-mail: zhfg@suda.edu.cn; zouguifu@suda.edu.cn

Superconductors are used in military and commercial applications due to the full diamagnetic and zero resistance properties. Hereinto, niobium nitride (NbN) has been extensively studied for its excellent superconducting properties, such as high transition temperature (T_c), large superconducting energy gap, narrow transition width and good stability. Superconducting NbN films are widely used in low temperature superconducting devices, for instance, hot electron bolometer, superconducting quantum interference devices and rapid single flux quantum. Especially, in 2001 Gol'tsman has successfully detected a single photon response of 810 nm near-infrared using an ultra-thin superconducting NbN, which proved that the high-quality growth of ultra-thin NbN film was the key step for high resolution and sensitivity of the superconducting detector. Up to now, atomic layer deposition (ALD), molecular beam epitaxy (MBE), pulsed laser deposition (PLD) and magnetron sputtering have been successfully used to grow NbN thin films. However, T_c is decreasing gradually as the reduced of thickness. Therefore, there is still a challenge to grow ultra-thin superconducting NbN film with high performance.

In this work, 5 nm thickness of superconducting epitaxial NbN film has been grown on MgO<100> substrate by magnetron sputtering. We systematically study the effect of different sputtering parameters on the superconductivity properties of the NbN film. The experiment results show that the high vacuum, high sputtering temperature and low working pressure are positively correlated with the superconducting transition temperature of NbN film under the premise of suitable argon-nitrogen ratio or magnetron power. The analyses of physical property measurement system (PPMS) indicate that as-grown 5 nm-thick NbN film has high performance with a superconducting transition temperature as high as 12.5 K under the optimum condition. Morphologic characterizations show that the ultra-thin NbN films have high density and smoothness with 0.116 nm of the surface roughness. Microstructural measurements also illustrate the epitaxial growth of NbN on MgO substrate. This work demonstrates the ultra-thin NbN films can be well controllably grown with high quality and offers a platform to fabricate the ultra-thin superconducting devices in the coming future.

magnetron sputtering, epitaxial growth, ultra-thin film, superconducting, niobium nitride

doi: [10.1360/N972019-00314](https://doi.org/10.1360/N972019-00314)