

# N<sub>2</sub> 流速对外延 TiN 薄膜超导性质及 维度特性的影响\*

陈轶龙<sup>1)2)</sup> 刘钰川<sup>1)2)</sup> 孙宜辉<sup>1)2)</sup> 王小妮<sup>2)</sup> 彭炜<sup>2)</sup>  
吴禹<sup>2)†</sup> 牟刚<sup>2)‡</sup> 林志荣<sup>1)2)††</sup>

1) (上海大学微电子学院, 上海 201800)

2) (中国科学院上海微系统与信息技术研究所, 上海 200050)

(2026 年 1 月 28 日收到; 2026 年 2 月 28 日收到修改稿)

本研究采用直流反应磁控溅射技术在 MgO 基底上外延生长了厚度为 35 nm 的 TiN 薄膜, 并系统探究了薄膜生长过程中氮气 (N<sub>2</sub>) 流速对 TiN 薄膜表面形貌、超导转变温度 ( $T_c$ )、剩余电阻率比 (RRR)、低温下的正常态电阻率  $\rho_n$ 、上临界磁场以及超导维度特性的影响. 实验结果表明, 在 N<sub>2</sub> 流速为 1.5 sccm (1 sccm = 1 mL/min@0 °C, 1.013×10<sup>5</sup> Pa) 时沉积的薄膜展现出最佳综合性能, 包括最高的超导转变温度 (4.93 K)、最大的 RRR、最小的  $\rho_n$  以及最低的垂直方向上临界磁场斜率. 上临界磁场显示出显著的各向异性特征. 值得注意的是, 平行方向上临界磁场数据表明, 样品质量的优化会导致薄膜行为偏离二维特性, 这为探究薄膜厚度之外影响超导维度的其他因素提供了新的视角. 本研究的结果对全面理解薄膜生长参数与超导性能之间的关系提供了重要参考.

**关键词:** TiN 薄膜, 超导电性, 上临界场, 维度

**DOI:** 10.7498/aps.75.20260155

**CSTR:** 32037.14.aps.75.20260155

## 1 引言

超导薄膜不仅是电子应用的材料基础, 也是研究低维超导现象的理想平台<sup>[1-6]</sup>. 氮化物超导材料因其良好的化学稳定性、可加工性和超导性能, 被广泛应用于超导电子器件中<sup>[7-9]</sup>. 其中, TiN 薄膜具有优异的抗氧化性、热稳定性和良好的导电性, 在电子器件应用中展现出巨大潜力. 作为超导体, TiN 薄膜表现出低微波损耗<sup>[10]</sup>和高动感电感<sup>[11]</sup>的

特性, 这使其在量子技术相关的多个领域得到广泛应用, 包括超导量子比特电路<sup>[12,13]</sup>、光子探测器<sup>[14]</sup>、超导放大器<sup>[15,16]</sup>以及量子相位滑移器件<sup>[17]</sup>. 近年来, TiN 薄膜在超导微波谐振腔中的应用<sup>[18-21]</sup>日益受到关注. Narayan 等<sup>[22]</sup>和 Vispute 等<sup>[23]</sup>报道显示, 基于 TiN 薄膜制备的微波谐振器品质因子可超过  $2 \times 10^6$ .

TiN 薄膜的制备通常采用多种方法, 如磁控溅射<sup>[24]</sup>、脉冲激光沉积<sup>[25,26]</sup>和分子束外延<sup>[27]</sup>等. 由于薄膜的超导特性直接影响其在量子电路中的损

\* 中国科学院战略性先导科技专项 (批准号: XDB0670000, XDA0520202)、国家重点研发计划 (批准号: 2023YFB4404904)、广东省重点领域研发计划 (批准号: 2020B0303030002) 和集成电路材料全国重点实验室自主部署项目 (批准号: SKLJC-Z2024-B04) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wuyu@mail.sim.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: mugang@mail.sim.ac.cn

†† 通信作者. E-mail: zrlin@mail.sim.ac.cn

耗特性, 因此研究生长条件如何影响 TiN 薄膜的超导性能具有重要的实际意义. 本团队的已有研究表明, 衬底类型对 TiN 薄膜的晶体取向有显著影响<sup>[28]</sup>. 值得注意的是, MgO 衬底与 TiN 具有相同的 NaCl 型晶体结构且晶格失配较小, 有利于生长高质量的 (100) 取向 TiN 薄膜<sup>[23]</sup>. 尽管已有关于生长参数对薄膜性能影响的报道<sup>[29]</sup>, 但针对 TiN 薄膜生长条件与其超导行为 (特别是临界磁场、各向异性、相干长度等) 之间关联的系统研究仍然缺乏.

另一方面, 随着尺寸的减小, 超导材料会表现出与块体材料完全不同的低维特性, 例如超导-绝缘体相变<sup>[30-33]</sup>、量子相位滑移<sup>[34-38]</sup>、量子格里菲斯奇异性<sup>[39-43]</sup>、Ising 超导<sup>[44-46]</sup>、量子金属态<sup>[47-50]</sup>等. 在该领域中, 从三维 (3D) 到二维 (2D) 超导的转变通常被归因于薄膜厚度与超导相干长度之间关系的演变, 而对于其他因素的影响则关注较少. 关于薄膜生长条件和样品质量的系统性研究, 有助于探索更多关于超导维度变化的信息.

本工作系统探索了薄膜生长过程中 N<sub>2</sub> 流速对 TiN 薄膜超导和维度特性的调控作用. 采用反应磁控溅射技术, 基于不同的 N<sub>2</sub> 流速在 MgO 衬底上外延生长了 TiN 薄膜, 并对其超导行为进行了细致测量. 结果表明, 临界温度 ( $T_c$ )、剩余电阻率比 (RRR)、正常态电阻率 ( $\rho_n$ ) 以及上临界磁场均随 N<sub>2</sub> 流速发生显著变化, 并在 1.5 sccm 时获得最佳薄膜质量. 此外, 我们观测到了上临界磁场的各向异性. 值得强调的是, 我们发现了除了薄膜厚度之外, 影响超导维度的其他重要因素.

## 2 实验

采用直流反应磁控溅射技术在 10 mm×10 mm 的 MgO 衬底上沉积了 TiN 薄膜. 使用的是纯度为 99.9999% 的钛靶, 反应腔本底真空度约为  $6 \times 10^{-8}$  Pa. 溅射过程在高纯 Ar (99.9999%) 和 N<sub>2</sub> (99.9999%) 的混合气氛中进行. 在溅射过程中, Ar 流速固定为 15 sccm (1 sccm=1 mL/min@0 °C,  $1.013 \times 10^5$  Pa), 在 0.8—1.8 sccm 范围内对 N<sub>2</sub> 流速进行调控. 在本文中, 根据 N<sub>2</sub> 流速对样品进行命名, 例如, 在 1.3 sccm N<sub>2</sub> 流速下生长的样品命名为 TiN\_1.3. 其他参数保持固定, 详细的生长参数见表 1. 通过调节沉积时间将薄膜厚度控制在大约

表 1 TiN 薄膜的生长参数  
Table 1. Growth parameters of TiN films.

参数	数值
Ar 流速/sccm	15
N <sub>2</sub> 流速/sccm	0.8—1.8
功率/W	151
沉积压力/Pa	0.22
电压/V	430
电流/A	0.36
温度/°C	500

约 35 nm.

采用 X 射线衍射仪 (XRD, Bruker D8 diffractometer) 和原子力显微镜 (AFM, Bruker Dimension Icon) 对 TiN 薄膜的晶体结构和表面形貌进行表征. 厚度通过 X 射线反射率 (XRR) 测量 (高分辨率 XRD, Bruker, D8 Discover) 确定. 电输运性能使用物性测量系统 (PPMS, Quantum Design) 通过标准四探针法进行测量, 外加磁场沿两个方向施加: 垂直于薄膜表面和平行于薄膜表面.

## 3 结果与分析

### 3.1 薄膜表征

通过 XRD 对所获薄膜的晶体结构进行表征. 图 1(a) 显示了在两种不同 N<sub>2</sub> 流速下生长的 TiN 薄膜的典型 XRD 图谱. 两种薄膜均在约 42.6° 处表现出明显的 (200) 衍射峰, 证实了高质量 TiN 薄膜的成功生长. 通过使用简单的三层模型 (MgO 衬底/TiN 薄膜/TiO 层) 来拟合 XRR 数据, 以获得薄膜厚度信息. 图 1(b) 显示了代表性样品 TiN\_1.3 的 XRR 数据 (黑色圆圈) 和相应的拟合曲线 (橙色线), 拟合结果确认该样品厚度约为 35 nm. 对其他样品的 XRR 测试结果显示, 本研究中的所有样品均具有相近的厚度.

此外, 我们通过 AFM 测量表征了 TiN 薄膜的表面形貌. 图 1(c)—(e) 展示了 3 个典型样品 TiN\_1.2, TiN\_1.5 和 TiN\_1.6 的 AFM 图像. 由图 1(c)—(e) 可以看出, 在 5 μm 的扫描范围内, 3 个薄膜都呈现出平整的表面, 具有均匀分布的晶粒和较低的均方根粗糙度 ( $R_q$ ) 值. 测得的 3 个样品的  $R_q$  值分别为 0.142 nm, 0.325 nm 和 0.319 nm. 薄膜的优异表面平整度可归因于 TiN 与 MgO 衬底之间良好的晶格匹配和实验中对生长条件的成功控制.

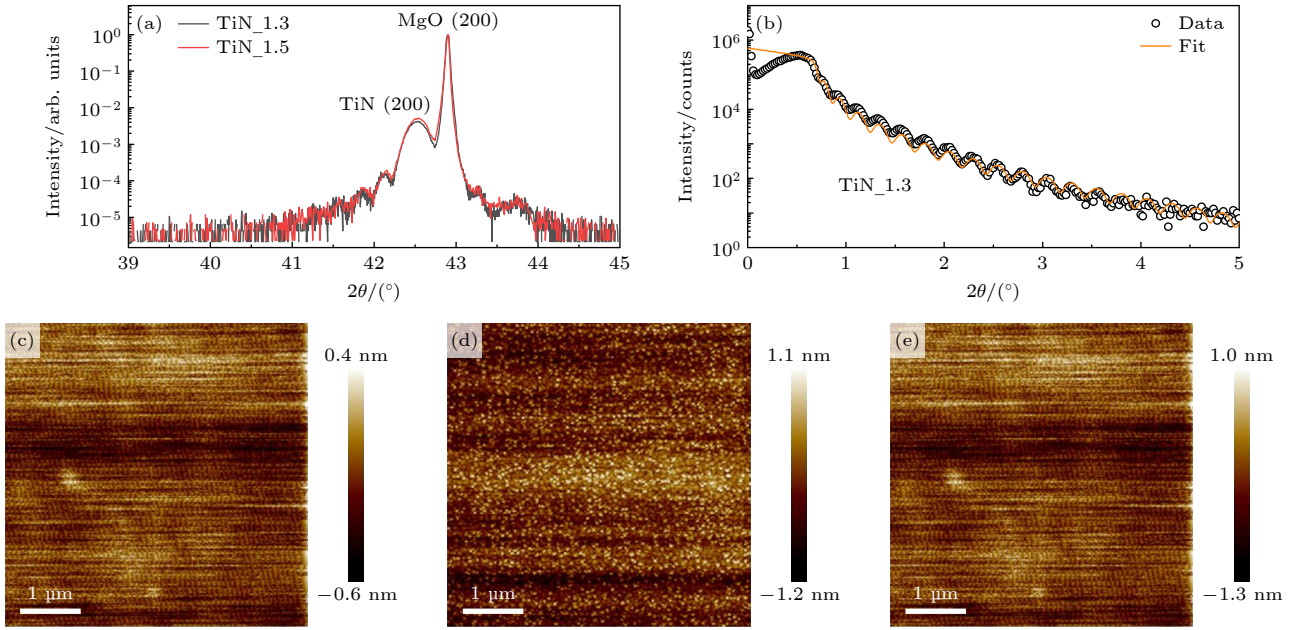


图 1 (a) 不同  $N_2$  流速下生长的 TiN 薄膜的 X 射线衍射图谱; (b)  $N_2$  流速为 1.3 sccm 的 TiN 样品的 XRR 曲线, 橙色曲线显示拟合结果; (c)–(e) 在  $N_2$  流速为 1.2, 1.5 和 1.6 sccm 下沉积的 TiN 薄膜的 AFM 图像  
 Fig. 1. (a) X-ray diffraction patterns of TiN films grown under different  $N_2$  flow rates; (b) the X-ray reflection curve of TiN sample with  $N_2$  flow rate of 1.3 sccm. The orange curve shows the fitting results; (c)–(e) AFM images of TiN thin films deposited at  $N_2$  flow rates of 1.2, 1.5, and 1.6 sccm, respectively.

### 3.2 超导态与正常态特性

通过电输运测量研究了不同  $N_2$  流速下生长的样品在超导态和正常态的物理性质. 图 2(a) 显示了归一化电阻率 ( $\rho/\rho_{300\text{ K}}$ ) 随温度的变化关系. 正常态下的电阻率行为呈现出随  $N_2$  流速变化而发生的系统性演变: 随着  $N_2$  流速的下降, TiN 薄膜在正常态的金属性逐渐被压制, 在  $N_2$  流速降低到 0.8 sccm 时其电阻率已经几乎不随温度而变. 在低温区域, 在大多数样品 ( $N_2$  流速  $\geq 1.1$  sccm) 中都可以观察到陡峭的超导转变. 图 2(b) 显示了电阻率数据在低温区的放大图, 从图中可以更清晰地观察到超导转变. 由图 2(b) 可以看出, 随着  $N_2$  流速降低, TiN 薄膜的超导转变温度 ( $T_c$ ) 逐渐降低, 当  $N_2$  流速低于 1.1 sccm 时, 零电阻消失.

图 2(c) 总结了  $T_c$  和剩余电阻率比 (RRR) 随  $N_2$  流速的变化情况. 此处  $T_c$  值采用  $50\%\rho_n$  判据确定 ( $\rho_n$  为超导转变之上 5 K 时正常态电阻率),  $RRR = \rho_{300\text{ K}}/\rho_n$ , 为 300 K 时的电阻率与低温下的正常态电阻率之比. 从图 2(c) 中可以看出, 在约 1.5 sccm 以下,  $T_c$  随  $N_2$  流速的增加明显上升, 随后区域饱和; 而 RRR 则呈现先增加后减少的趋势. 另外, 我们对低温下样品的正常态电阻率  $\rho_n$  进行了对比, 如图 2(d) 所示. 结果显示,  $\rho_n$  随  $N_2$  流速

的增大明显下降, 表明电子散射效应的降低. 为了更清楚地呈现高流速区的变化趋势, 将 1.2—1.8 sccm 范围内的数据展示在如图 2(d) 的插图中. 由图 2(d) 可以看出,  $N_2$  流速为 1.5 sccm 时  $\rho_n$  达到极小值, 约为  $5.2\ \mu\Omega\cdot\text{cm}$ . 很显然, RRR 与  $\rho_n$  随  $N_2$  流速的演化趋势是相互印证的, 一致表明在  $N_2$  流速为 1.5 sccm 时 TiN 薄膜质量达得了最优, 在此条件下 TiN 薄膜的  $T_c$  为 4.93 K.

值得注意的是, 上述结果是在高本底真空条件 (约  $6\times 10^{-8}$  Pa) 的条件下获得的. 实验中我们发现, 当本底真空度降低时, TiN 薄膜的超导性能会显著下降. 图 3 展示了两个在相同  $N_2$  流速 (1.1 sccm) 但不同本底真空水平下制备的样品的电阻率数据. 样品 TiN\_1.1 和 TiN\_1.1-2 分别在本底真空度为  $6\times 10^{-8}$  Pa 和  $6\times 10^{-6}$  Pa 的条件下生长. 结果表明, 当本底真空度降低至  $6\times 10^{-6}$  Pa 时, 样品的  $T_c$  从 3.10 K 下降到 2.24 K. 同时, RRR 值从 1.45 下降到 1.23. 这一结果表明, 溅射腔的本底真空度对所制备 TiN 薄膜的超导行为有着显著影响.

### 3.3 上临界磁场及其各向异性

通过在测量不同方向磁场下的温度-电阻率数据, 我们系统研究了 TiN 薄膜的电输运行为.

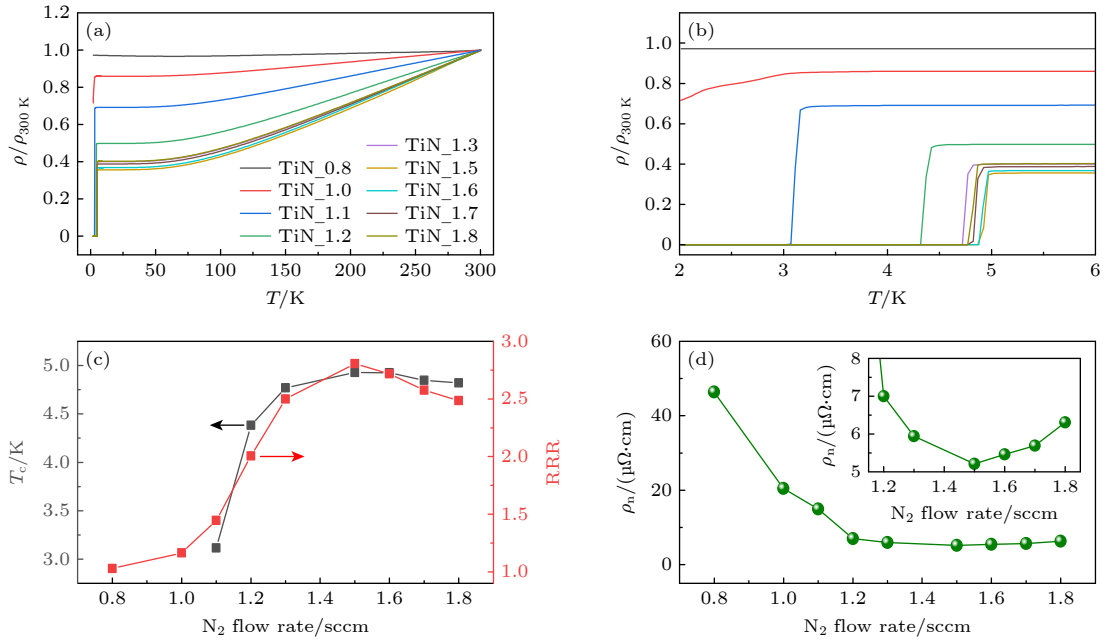


图 2 (a) 零磁场下, 不同  $N_2$  流速条件下生长的 TiN 样品的归一化电阻率随温度的变化; (b) 低温区域归一化电阻率数据的放大图; (c) 超导临界温度  $T_c$ (左) 和剩余电阻率比 RRR(右) 随  $N_2$  流速的变化; (d) 5 K 下的正常态电阻率 ( $\rho_n$ ) 随  $N_2$  流速的变化, 插图显示了其在 1.2—1.8 sccm 范围内的放大图

Fig. 2. (a) Normalized resistivity of the samples grown under different  $N_2$  flow rates under zero magnetic field varies with temperature; (b) an enlarged view of the normalized resistivity in the low-temperature region; (c) the SC critical temperature  $T_c$  (left) and the residual resistivity ratio RRR (right) are functions of  $N_2$  flow rate; (d) normal-state resistivity at 5 K ( $\rho_n$ ) as a function of  $N_2$  flow rate, inset shows the enlarged view of the data in the range 1.2–1.8 sccm.

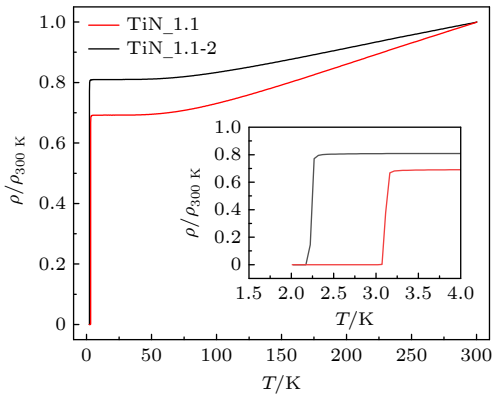


图 3 不同本底真空水平下, 以 1.1 sccm  $N_2$  流速生长的样品的归一化电阻率随温度的变化关系. 插图显示了低温区域数据的放大视图

Fig. 3. Temperature dependence of normalized resistivity of the samples grown with the  $N_2$  flow rates of 1.1 sccm under different background vacuum levels. The inset shows an enlarged view of the data in the low-temperature region.

图 4(a)–(h) 展示了四个代表性样品在垂直和平行薄膜表面的磁场下的电阻率-温度曲线. 数据清晰地表明, 随着磁场增加, 超导转变向更低的温度移动. 仍旧采用  $50\% \rho_n$  判据, 我们确定了这四个样品的上临界场  $B_{c2}(T)$  的温度依赖关系, 并总结在图 4(i)–(l) 中. 值得注意的是, 平行于薄膜表

面的上临界场 ( $B_{c2,\parallel}$ ) 显著高于垂直方向的结果 ( $B_{c2,\perp}$ ), 表明 TiN 薄膜具有明显的各向异性. 此外, 不同方向的  $B_{c2}(T)$  随温度的演变趋势也显示出明显不同的特征: 当磁场垂直于薄膜表面时,  $B_{c2,\perp}(T)$  与温度呈近似线性关系; 相比之下, 在平行磁场下,  $B_{c2,\parallel}(T)$  的温度依赖性显示出负曲率. 我们知道, 对于二维超导体, 平行方向的上临界磁场满足<sup>[51]</sup>  $B_{c2,\parallel}(T) \propto (1 - T/T_c)^{0.5}$ . 为了评估实验数据对这一关系的符合程度, 我们将指数设置为可变参数  $n$ , 即有如下公式:

$$B_{c2,\parallel}(T) = B_{c2,\parallel}(0) \times (1 - T/T_c)^n, \quad (1)$$

其中  $B_{c2,\parallel}(0)$  和  $n$  为拟合参数. 很显然, 当参数  $n = 0.5$  时, 这种行为与二维超导的典型特征一致<sup>[51]</sup>.  $B_{c2,\parallel}(0)$  实际上是 0 K 时的  $B_{c2,\parallel}$  值. 基于 (1) 式的拟合曲线如图 4(i)–(l) 中的黑色实线所示.

所有 6 个样品的上临界场总结在图 5(a) 和图 5(b) 中. 由图 5(a) 和图 5(b) 可以观察到, 对于两种磁场方向, 上临界场均随  $N_2$  流速的变化呈现清晰的演变. 首先研究  $B_{c2}$  的各向异性, 其特征由各向异性参数  $\Gamma = B_{c2,\parallel}/B_{c2,\perp}$  来表征. 如图 5(c) 所示, 6 个样品的  $\Gamma$  值都随着温度的下降而逐渐减

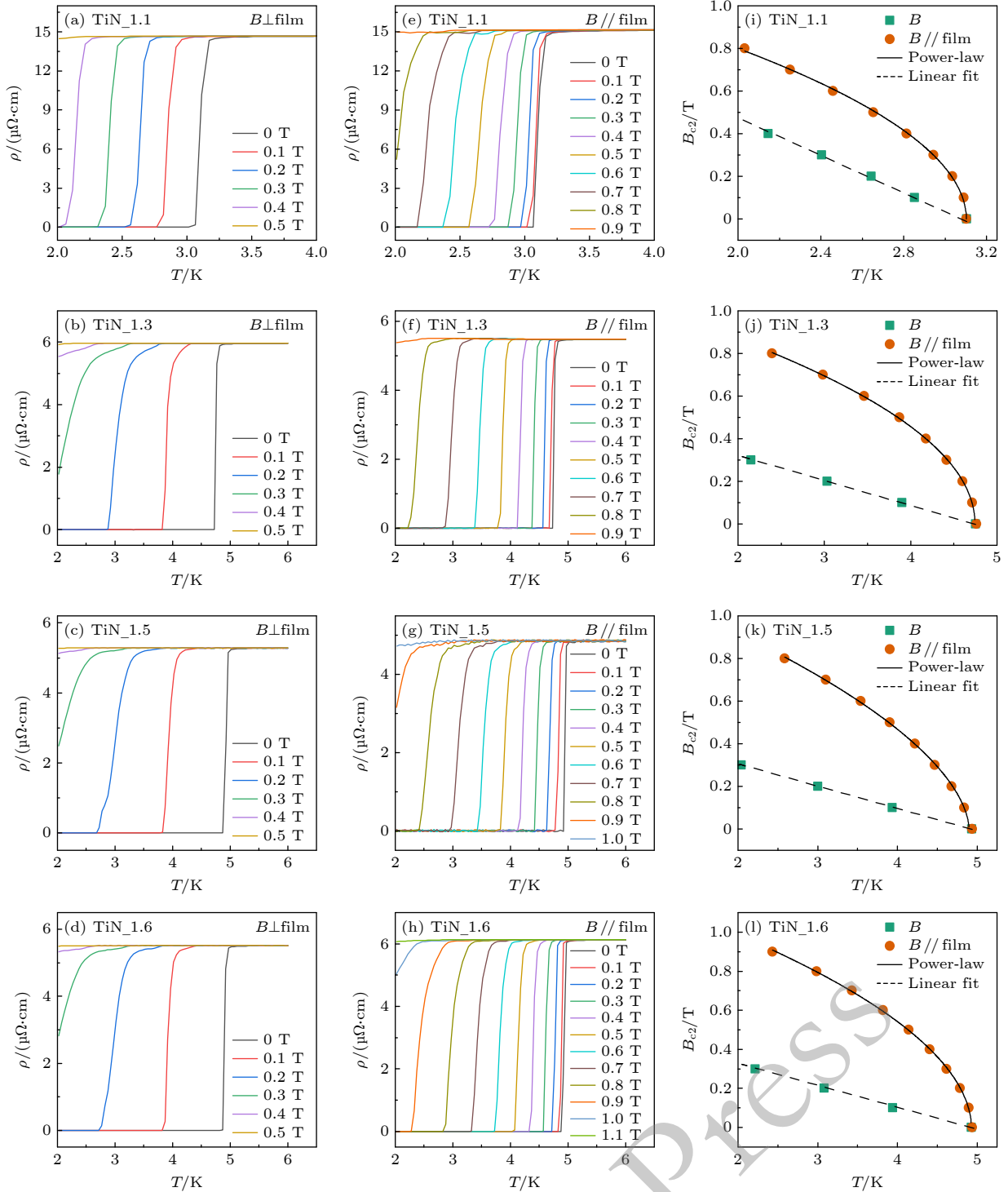


图 4 (a)–(d) 4 个样品在垂直磁场下的电阻率的温度依赖性; (e)–(h) 相同样品在平行磁场下的电阻率的温度依赖性; (i)–(l) 4 个样品在两个方向的上临界场随温度的变化

Fig. 4. (a)–(d) Temperature dependence of resistivity of four samples under out-of-film field; (e)–(h) temperature dependence of resistivity of the same samples under in-film field; (i)–(l) the upper critical field  $B_{c2}$  in two directions of the four samples varies with temperature.

小. 这一趋势与在其他超导薄膜中观察到的结果类似<sup>[7]</sup>. 值得注意的是, 其值随  $N_2$  流速呈现出规律性变化. 在图 5(d) 中, 我们比较了样品在温度  $T = 0.8T_c$  时的  $\Gamma$  值, 可见,  $\Gamma$  随  $N_2$  流速的增大呈线性

上升趋势, 但在 1.3—1.5 sccm 之间存在异常区域, 其上升趋势突然放缓.

为了进行定量比较, 计算了垂直方向的上临界场在  $T_c$  附近的斜率  $B^* = -dB_{c2,\perp}/dT|_{T=T_c}$ , 结果

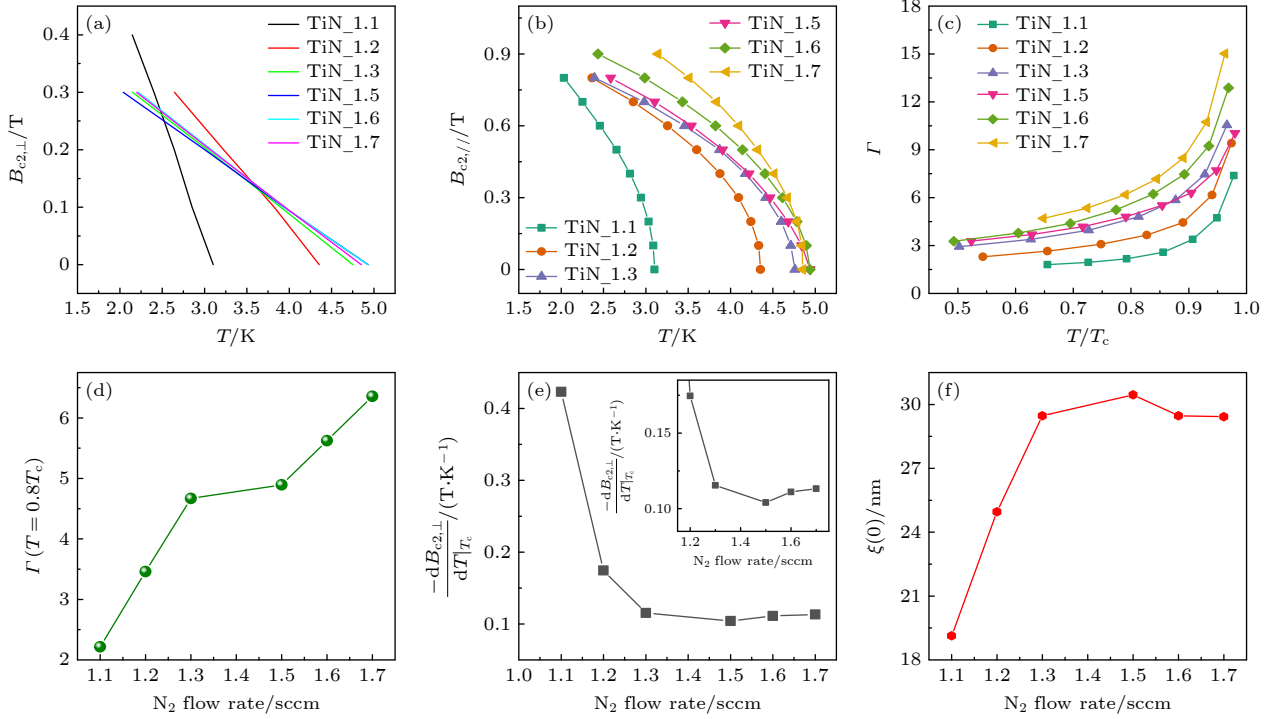


图5 (a), (b) 不同  $N_2$  流速薄膜的垂直和平行方向上临界场 ( $B_{c2,\perp}$  和  $B_{c2,\parallel}$ ) 的温度依赖性; (c) 各向异性参数  $\Gamma$  随约化温度  $T/T_c$  的变化; (d) 温度  $T = 0.8T_c$  时的  $\Gamma$  值、(e)  $B_{c2,\perp}$  在  $T_c$  附近的斜率以及 (f) 零温相干长度  $\xi(0)$  随  $N_2$  流速的变化曲线; (e) 分图中的插图显示了数据的放大图

Fig. 5. (a), (b) Temperature dependence of the out-of-film and in-film upper critical field ( $B_{c2,\perp}$  and  $B_{c2,\parallel}$ ) of the films with different  $N_2$  flow rates; (c) anisotropic parameter  $\Gamma$  as a function of the reduced temperature  $T/T_c$ ; (d) values of  $\Gamma$  at the temperature  $T = 0.8T_c$ , (e) slope of  $B_{c2,\perp}$  near  $T_c$ , and (f) coherence length at zero temperature  $\xi(0)$  as a functions of  $N_2$  flow rate. The inset of (e) shows an enlarged view of the data.

如图 5(e) 所示,  $B^*$  值与  $N_2$  流速在较大范围内呈负相关, 且在 1.5 sccm 时达到最小值. 众所周知, 该斜率与正常态电阻率密切相关<sup>[7]</sup>, 而后者反映了薄膜中杂质散射的程度. 因此,  $B^*$  在 1.5 sccm 处出现最小值这一事实表明, 在此条件下生长的薄膜具有最低的杂质散射, 这也导致了该样品最大的平行薄膜方向相干长度  $\xi(0)$ , 如图 5(f) 所示. 这与从  $T_c$  和 RRR 数据得出的结论一致 (见图 2(c)), 并进一步证实了在此流速下生长的薄膜表现出最佳质量.

### 3.4 维度特性

平行方向上临界场随温度的演变可以提供关于超导维度特性的重要信息<sup>[51]</sup>. 为了进行更清晰的比较, 对 6 个样品的  $B_{c2,\parallel}(T)$  数据, 分别使用  $B_{c2,\parallel}(0)$  和  $T_c$  对  $B_{c2,\parallel}$  和  $T$  进行归一化, 结果显示在图 6(a) 中. 结果表明, 除了 TiN\_1.5 以外的其他 5 个样品的数据基本遵循相似的演变规律: 在  $T/T_c = 1$  附近,  $B_{c2,\parallel}(T)/B_{c2,\parallel}(0)$  剧烈上升, 随着温度降低呈现逐渐变平缓的上升趋势. 与其他样品相比, 样品 TiN\_1.5 的数据在  $T/T_c = 1$  附近表现出更平缓

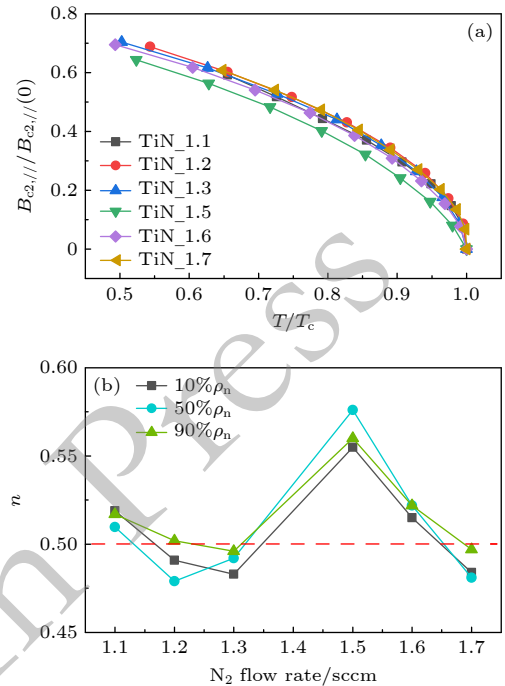


图 6 (a) 归一化的  $B_{c2,\parallel}$  随约化温度  $T/T_c$  的变化; (b) 基于 3 种不同判据所得  $B_{c2,\parallel}$  数据的拟合参数  $n$  随  $N_2$  流速的变化

Fig. 6. (a) Normalized  $B_{c2,\parallel}$  as a function of the reduced temperature  $T/T_c$ ; (b) the fitting parameter  $n$  from the data based on three different criterion as a functions of  $N_2$  flow rate.

的上升趋势, 导致其整体数值低于其他样品.

这种  $B_{c2}(T)/B_{c2,||}(0)-T/T_c$  曲线的演变特征可以通过 (1) 式中的参数  $n$  进行定量评估.  $n$  的数值随  $N_2$  流速的变化如图 6(b) 所示. 很明显, 所有样品的  $n$  值基本都在 0.5 左右, 表明薄膜中的超导电性呈现二维特性<sup>[51]</sup>. 值得注意的是, 样品 TiN\_1.5 的  $n$  值为 0.58, 明显高于其他样品, 也高于二维超导预期的 0.5, 这表明该样品表现出对二维超导电性的偏离. 为了进一步验证这一行为的可靠性, 我们基于另外两个计算  $B_{c2,||}$  的判据 ( $10\%\rho_n$  和  $90\%\rho_n$ ), 对数据进行了分析. 如图 6(b) 所示, 这两个判据所得的  $n$  值随  $N_2$  流速的演化, 呈现与  $50\%\rho_n$  判据所得数据相一致的趋势, 表明这一行为的出现并不受具体判据的影响.

## 4 讨论

从器件应用的角度来看, 超导性能和薄膜平整度是需要考虑的两个最重要的因素. 从本研究获得的数据可以看出, 无论是从其超导临界温度、RRR 还是其上临界磁场行为来看, 样品 TiN\_1.5 都无可辩驳地表现出最佳的超导性能.

具体到薄膜的表面形貌, 我们的结果显示出与基于 Si 衬底的薄膜非常不同的特征. 我们之前在 Si 衬底上的实验结果<sup>[52]</sup>表明,  $N_2$  流速对 TiN 薄膜的表面粗糙度有显著影响: 当  $N_2$  流速小于 1.6 sccm 时, 薄膜呈现岛状生长模式, 其表面粗糙度会显著增加. 这与本研究中基于 MgO 衬底的结果有显著不同. 如图 1(c)–(e) 所示, 在低至 1.2 sccm 的  $N_2$  流速下获得的样品仍然显示出非常平坦的表面. 这一结果表明, MgO 和 TiN 之间良好的晶格匹配抑制了低  $N_2$  流速下岛状生长模式的出现.

考虑到衬底对 TiN 薄膜生长的显著影响, 比较在不同衬底上生长的样品的超导特性具有重要意义. 表 2 中总结了相同厚度 (35 nm) 下最优的 TiN 薄膜在 3 种不同衬底上的关键超导参数<sup>[28]</sup>. 由表 2 可以看出, 以 MgO 为衬底的 TiN 样品显示

表 2 不同衬底上生长的 TiN 薄膜的物理参数对比  
Table 2. Comparison of physical parameters of TiN films grown on different substrates.

衬底	$T_c/K$	RRR	$B^*(T/K)$	参考文献
蓝宝石	4.71	1.55	0.46	[28]
Si	5.14	2.09	0.33	[28]
MgO	4.93	2.81	0.10	本工作

出最高的 RRR 和最低的  $B^*$  值, 再次证明了 MgO 上 TiN 薄膜的高质量. 但其  $T_c$  略低于 Si 衬底上的样品, 这可能源于 Si 衬底与 TiN 之间的晶格失配引起的应力对后者的超导电性所起到的增强作用.

在质量最优的 TiN\_1.5 样品中观察到的对二维超导电性的偏离是一个值得注意的问题. 通常, 在研究薄膜超导电性的维度变化时, 人们考虑的主要因素是薄膜厚度与超导相干长度之间的关系. 当薄膜厚度减小到小于 (或可比拟于) 其相干长度时, 超导行为会从三维转变为二维. 在本研究中, 所有样品的厚度均固定为 35 nm. 同时, 我们通过计算得知, 样品 TiN\_1.5 的垂直方向相干长度与样品 TiN\_1.6 非常接近. 然而, TiN\_1.5 的  $n$  值却显著高于其他样品. 因此, 我们的结果清楚地表明, 除了薄膜厚度之外, 还有其他因素在起作用. 我们认为, 这实际上提供了一个研究薄膜内部状态对其超流行为影响的范例. 我们知道, 热涨落和超流刚度是决定二维超导行为的两个关键因素<sup>[53]</sup>. 在表现出二维超导电性的系统中, 通常伴随着显著的热涨落效应和与之相关的超流刚度降低. 另一方面, 无序和缺陷的存在会降低材料的超流刚度. 从这个意义上说, 高质量意味着高超流刚度, 它可以帮助抵抗涨落的影响, 使系统行为更接近三维特性 (尽管程度较弱).

## 5 结论

在本研究中, 采用直流反应磁控溅射技术在 MgO(100) 衬底上成功生长了高质量的 TiN 超导薄膜. 实验结果表明,  $N_2$  流速显著地影响薄膜的结晶质量和超导特性. 在  $N_2$  流速为 1.5 sccm 时生长的薄膜表现出最佳的综合性能, 包括高  $T_c$ 、大 RRR、低  $\rho_n$  以及极低的垂直方向上临界磁场随温度的变化斜率. 与使用 Si 衬底的情况不同, MgO 衬底上 TiN 薄膜的表面粗糙度基本不受  $N_2$  流速影响. 上临界磁场显示出显著的各向异性行为. 值得强调的是, 我们的结果揭示了除了薄膜厚度之外影响超导薄膜维度特性的其他重要因素. 本研究为优化 TiN 薄膜质量提供了重要的实验基础, 并为研究低维超导系统中的维度效应提供了新的视角.

## 参考文献

- [1] Haviland D B, Liu Y, Goldman A M 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62**

2180

- [2] Saito Y, Nojima T, Iwasa Y 2017 *Nat. Rev. Mater.* **2** 16094
- [3] Chen J X, Li H 2025 *J. Funct. Mater. Devices* **31** 1 (in Chinese) [陈敬学, 李浩 2025 功能材料与器件学报 **31** 1]
- [4] Zhou G D, Lü W, Wang H, Nie Z H, Chen Y Q, Li Y Y, Huang H L, Chen W Q, Sun Y J, Xue Q K, Chen Z Y 2025 *Nature* **640** 641
- [5] Fang Y Q, Tu X Y, Liu Y X, Peng W, Mu G, Huang F Q 2025 *J. Funct. Mater. Devices* **31** 42 (in Chinese) [方裕强, 涂雪洋, 刘义鑫, 彭伟, 牟刚, 黄富强 2025 功能材料与器件学报 **31** 42]
- [6] Xu L, Zhang X F, You L X 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 187402 (in Chinese) [许洛, 张孝富, 尤立星 2025 物理学报 **74** 187402]
- [7] Wang Z, Kawakami A, Uzawa Y, Komiyama B 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 7837
- [8] Wang X N, Wang L J, Liu Y X, Gao W P, Wu Y, Xu Z L, Jin H, Zhang L, Peng W, Wang Z, Li W, Mu G, Lin Z R 2023 *Physica C* **606** 1354223
- [9] Chen Y, Zheng X Q, Zhou H, Chen J X, Ma M, Li H, Zhang X F, You L X 2025 *J. Funct. Mater. Devices* **31** 486 (in Chinese) [陈颖, 郑晓倩, 周慧, 陈敬学, 马森, 李浩, 张孝富, 尤立星 2025 功能材料与器件学报 **31** 486]
- [10] Vissers M R, Gao J, Wisbey D S, Hite D A, Tsuei C C, Corcoles A D, Steffen M, Pappas D P 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 232509
- [11] Diener P, Schellevis H, Baselmans J J A 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 252601
- [12] Oliver W D, Welander P B 2013 *MRS Bull.* **38** 816
- [13] Kim S, Terai H, Yamashita T, Qiu W, Fuse T, Yoshihara F, Ashhab S, Inomata K, Semba K 2021 *Commun. Mater.* **2** 98
- [14] Gao J, Vissers M R, Sandberg M O, Da Silva F C S, Nam S W, Pappas D P, Wisbey D S, Langman E C, Meeker S R, Mazin B A, Leduc H G, Zmuidzinas J, Irwin K D 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 142602
- [15] Ho Eom B, Day P K, LeDuc H G, Zmuidzinas J 2012 *Nat. Phys.* **8** 623
- [16] Longden J, Chaumont C, Klimovich N, Wood S, Boussaha F, Tan B 2025 *Open Research Europe* **5** 109
- [17] Yadav S, Kaushik V, Saravanan M P, Aloysius R P, Ganesan V, Sahoo S 2021 *Sci. Rep.* **11** 7888
- [18] Chang J B, Vissers M R, Corcoles A D, Sandberg M, Gao J, Abraham D W, Chow J M, Gambetta J M, Beth Rothwell M, Keefe G A, Steffen M, Pappas D P 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 012602
- [19] Jaim H I, Aguilar J, Sarabi B, Rosen Y, Ramanayaka A, Lock E, Richardson C, Osborn K 2014 *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **25** 1
- [20] Torgovkin A, Chaudhuri S, Ruhtinas A, Lahtinen M, Sajavaara T, Maasilta I J 2018 *Supercond. Sci. Technol.* **31** 055017
- [21] Shearow A, Koolstra G, Whiteley S J, Earnest N, Barry P S, Heremans F J, Awschalom D D, Shirokoff E, Schuster D I 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 212601
- [22] Narayan J, Tiwari P, Chen X, Singh J, Chowdhury R, Zheleva T 1992 *Appl. Phys. Lett.* **61** 1290
- [23] Vispute R D, Talyansky V, Sharma R P, Choopun S, Downes M, Venkatesan T, Li Y, Salamanca-Riba L, Iliadis A A, Jones K A, Iliadis A A, Asif Khan M, Yang J W 1998 *Appl. Sur. Sci.* **127** 431
- [24] Krockenberger Y, Karimoto S, Yamamoto H, Semba K 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 083920
- [25] Hadacek N, Sanquer M, Villégier J -C 2004 *Phys. Rev. B* **69** 024505
- [26] Baturina T I, Islamov D R, Bentner J, Strunk C, Baklanov M R, Satta A 2004 *J. Exp. Theor. Phys. Lett.* **79** 337
- [27] Mironov A Y, Baturina T I, Vinokur V M, Postolova S V, Kropotin P N, Baklanov M R, Nasimov D A, Latyshev A V 2010 *Physica C* **470** S808
- [28] Liu Y X, Liu Y C, Xu Z L, Yu A B, Wang X N, Peng W, Wu Y, Mu G, Lin Z R 2024 *Supercond. Sci. Technol.* **37** 105015
- [29] Ohya S, Chiaro B, Megrant A, Neill C, Barends R, Chen Y, Kelly J, Low D, Mutus J, O'Malley P J J, Roushan P, Sank D, Vainsencher A, Wenner J, White T C, Yin Y, Schultz B D, Palmström C J, Mazin B A, Cleland A N, Martinis J M 2013 *Supercond. Sci. Technol.* **27** 015009
- [30] Bollinger A T, Dubuis G, Yoon J, Pavuna D, Misewich J, Božović I 2011 *Nature* **472** 458
- [31] Leng X, Garcia-Barriocanal J, Bose S, Lee Y, Goldman A M 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 027001
- [32] Wang F, Biscaras J, Erb A, Shukla A 2021 *Nat. Commun.* **12** 2926
- [33] Wang T, Yu A B, Liu Y X, Gu G D, Peng W, Di Z F, Jiang D, Mu G 2022 *Phys. Rev. B* **106** 104509
- [34] Zaikin A D, Golubev D S, van Otterlo A, Zimányi G T 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1552
- [35] Giordano N 1998 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2137
- [36] Sharifi F, Herzog A V, Dynes R C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 428
- [37] Lau C N, Markovic N, Bockrath M, Bezryadin A, Tinkham M 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 217003
- [38] Wang X N, Xu Z L, Liu X Y, Xu F, Liu Y X, Gao W P, Wu Y, Yang M, Peng W, Wang Z 2024 *Supercond. Sci. Technol.* **37** 045001
- [39] Xing Y, Zhang H M, Fu H L, Liu H W, Sun Y, Peng J P, Wang F, Lin X, Ma X C, Xue Q K, Jian W, Xie X C 2015 *Science* **350** 542
- [40] Saito Y, Nojima T, Iwasa Y 2018 *Nat. Commun.* **9** 778
- [41] Han X W, Wu Y, Xiao H, Zhang M, Gao M, Liu Y, Wang J, Hu T, Xie X M, Di Z F 2020 *Adv. Sci.* **7** 1902849
- [42] Liu Y, Qi S C, Fang J C, Sun J, Liu C, Liu Y Z, Qi J J, Xing Y, Liu H W, Lin X, Wang L L, Xue Q K, Xie X C, Wang J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 137001
- [43] Wang X N, Wang L J, Liu Y X, Chen F, Gao W P, Wu Y, Xu Z L, Peng W, Wang Z, Di Z F, Li W, Mu G, Lin Z R 2023 *Phys. Rev. B* **107** 094509
- [44] De la Barrera S C, Sinko M R, Gopalan D P, Sivadas N, Seyler K L, Watanabe K, Taniguchi, Tsen A W, Xu X D, Xiao D, Hunt B M 2018 *Nat. Commun.* **9** 1427
- [45] Xi X X, Wang Z F, Zhao W W, Park J -H, Law K T, H. Berger, Forro L, Shan J, Mak K F 2016 *Nat. Phys.* **12** 139
- [46] Lu J M, Zheliuk O, Leermakers I, Yuan N F Q, Zeitler U, Law K T, Ye J T 2015 *Science* **350** 1353
- [47] Tsen A W, Hunt B, Kim Y D, Yuan Z J, Jia S, Cava R J, Hone J, Kim P, Dean C R, Pasupathy A N 2016 *Nat. Phys.* **12** 208
- [48] Phillips P, Dalidovich D 2003 *Science* **302** 243
- [49] Ephron D, Yazdani A, Kapitulnik A, Beasley M R 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1529
- [50] Saito Y, Kasahara Y, Ye J, Iwasa Y, Nojima T 2015 *Science* **350** 409
- [51] Tinkham M 1996 *Introduction to Superconductivity* (New York: McGraw-Hill)
- [52] Wu Y, Liu Y X, Gao W P, Wang X N, He X L, Jin H, Peng W, Mu G, Lin Z R, Wang Z 2024 *Supercond. Sci. Technol.* **37** 115002
- [53] Beasley M R, Mooij J E, Orlando T P 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1165

# Influences of N<sub>2</sub> flow rate on the superconducting properties and dimensionality of epitaxial TiN thin films\*

CHEN Shilong<sup>1)2)</sup> LIU Yuchuan<sup>1)2)</sup> SUN Yihui<sup>1)2)</sup> WANG Xiaoni<sup>2)</sup>  
 PENG Wei<sup>2)</sup> WU Yu<sup>2)†</sup> MU Gang<sup>2)‡</sup> LIN Zhirong<sup>1)2)††</sup>

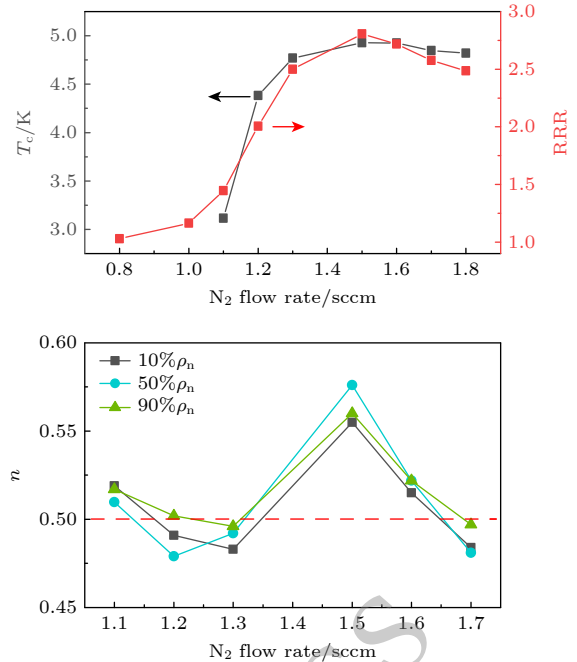
1) (School of Microelectronics, Shanghai University, Shanghai 201800, China)

2) (Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China)

( Received 28 January 2026; revised manuscript received 28 February 2026 )

## Abstract

TiN thin films have received great attention in the field of superconducting quantum computing due to their low loss characteristics derived from stable chemical and thermal properties, as well as good electrical conductivity. In this study, TiN thin films with a thickness of 35 nm were epitaxially grown on MgO substrates using dc reactive magnetron sputtering technology. The crystal structure, film thickness, and surface morphology of the thin films were characterized using X-ray diffraction, X-ray reflection, and atomic force microscopy. The films exhibit a very flat surface with a root mean square roughness of only a few tenths of a nanometer. The influences of nitrogen (N<sub>2</sub>) flow rate on the surface morphology, superconducting transition temperature ( $T_c$ ), residual resistivity ratio (RRR), normal-state resistivity ( $\rho_n$ ), upper critical field, and superconducting dimensionality were investigated systematically. The experimental results



show that TiN films deposited with a N<sub>2</sub> flow rate of 1.5 sccm exhibit optimal performance, including the highest  $T_c$  (4.93 K), the largest RRR, the lowest  $\rho_n$ , and the lowest slope of the out-of-film upper critical field near  $T_c$ . Moreover, the experiment shows that the background vacuum inside the growth chamber has a significant impact on the superconducting properties of TiN films, and its decrease can lead to the decrease of  $T_c$ . The upper critical field reveals a significant anisotropic feature. Importantly, the in-film upper critical field data demonstrates that the optimization of sample quality leads to deviation from 2D superconducting

\* Project supported by the Strategic Priority Research Program of the Chinese Academy of Sciences (Grant Nos. XDB0670000, XDA0520202), the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2023YFB4404904), the Key-Area Research and Development Program of Guangdong Province, China (Grant No. 2020B0303030002), and the Autonomous Deployment Project of State Key Laboratory of Materials for Integrated Circuits, China (Grant No. SKLJC-Z2024-B04).

† Corresponding author. E-mail: [wuyu@mail.sim.ac.cn](mailto:wuyu@mail.sim.ac.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [mugang@mail.sim.ac.cn](mailto:mugang@mail.sim.ac.cn)

†† Corresponding author. E-mail: [zrlin@mail.sim.ac.cn](mailto:zrlin@mail.sim.ac.cn)

behavior, which provides a new perspective on the influencing factors of superconducting dimensionality beyond the thickness of films. The present results provide useful references for a comprehensive understanding of the relationship between growth parameters and the superconducting properties of thin films.

**Keywords:** TiN film, superconductivity, upper critical field, dimensionality

**DOI:** [10.7498/aps.75.20260155](https://doi.org/10.7498/aps.75.20260155)

**CSTR:** [32037.14.aps.75.20260155](https://cstr.cn/32037.14.aps.75.20260155)

In Press