

02,08

Особенности сопротивления, критической температуры и микроструктуры криогенных тонких пленок алюминия

© М.А. Тарасов¹, А.А. Ломов², К.Д. Щербачев³, А.А. Татаринцев², М.В. Стрелков¹, Д.С. Жогов¹, Р.К. Козулин¹, А.М. Чекушкин¹, М.А. Маркина^{1,4}, А.Д. Голованова^{4,5}, А.М. Трояновский⁵, А.Л. Васильев^{6,7}

¹ Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия

² Отделение ФТИАН им. К.А. Валиева НИЦ „Курчатовский институт“, Москва, Россия

³ Национальный исследовательский технологический университет МИСИС, Москва, Россия

⁴ НИУ „Высшая школа экономики“, Москва, Россия

⁵ Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН, Москва, Россия

⁶ Отделение „Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова „Курчатовского комплекса кристаллографии и фотоники“ (КККиФ) НИЦ „Курчатовский институт“, Москва, Россия

⁷ Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет), Долгопрудный, Россия

E-mail: tarasov@hitech.cplire.ru

Поступила в Редакцию 6 марта 2025 г.

В окончательной редакции 6 марта 2025 г.

Принята к публикации 5 мая 2025 г.

Исследованы алюминиевые пленки толщиной 120 nm и многослойные структуры на их основе, полученные методом вакуумного термического напыления. Эти структуры, в отличие от объемных образцов, продемонстрировали повышенное на порядок удельное электрическое сопротивление до $260 \Omega \cdot \text{nm}$ и удвоенную температуру сверхпроводящего перехода 2.3 K. Показано, что наблюдаемая закономерность обусловлена как химической активностью алюминия, так и снижением скорости роста кристаллитов. Установлено, что при напылении на охлаждаемую жидким азотом подложку Si(111) за счет снижения скорости роста наблюдается уменьшение размеров зерен-кристаллитов с 50 до 15 nm и снижении величины шероховатости поверхности до $r_{\text{rms}} \sim 1 \text{ nm}$. Измеренные транспортные свойства исследуемых криогенных алюминиевых структур связаны с уменьшением толщины пленок до длины свободного пробега электронов, появлением дополнительного рассеяния носителей тока на атомах оксида, границах кристаллитов, структурных дефектах, искажениях и шероховатости внешних и внутренних границ. Проведенные исследования пленок методами AFM, SEM, TEM, EDXS, рентгеновской дифракции, показали корреляцию микроструктуры и электрических параметров пленок.

Ключевые слова: тонкие пленки, кристаллическая структура, морфология поверхности, остаточное сопротивление, кинетическая индуктивность.

DOI: 10.61011/FTT.2025.07.61180.18NN-25

1. Введение

Прогресс высокочастотной сверхпроводниковой электроники тесно связан с использованием материалов на основе Al, Nb и их сплавов [1]. Формируемые из них тонкие пленки и структуры широко используются при создании сверхпроводниковых микроволновых резонаторов, высокочувствительных детекторов на основе туннельных переходов сверхпроводник-изолятор-сверхпроводник (СИС, SIS) [2], элементов квантовых компьютеров [3]. Электрические характеристики пленок: их остаточное сопротивление и индуктивность, а также механические и адгезионные свойства играют важную роль в расширении температурного диапазона прибо-

ров и устройств на их основе. Например, эта цель достигается комбинированием пленок сверхпроводника с пленкой нормального металла через слой изолятора в структуре (SINIS) [4]. В такой комбинации удастся расширить динамический диапазон, сформировать эффективные электронные охладители.

Модификация электрофизических свойств сверхпроводящих пленок может быть достигнута используя различные механизмы управления их ростом или формированием на различных подложках. Приоритетными задачами являются увеличение критической температуры перехода в сверхпроводящее состояние [5] и контролируемая кинетическая индуктивность. Эти температурно-зависимые характеристики напрямую связаны с мик-

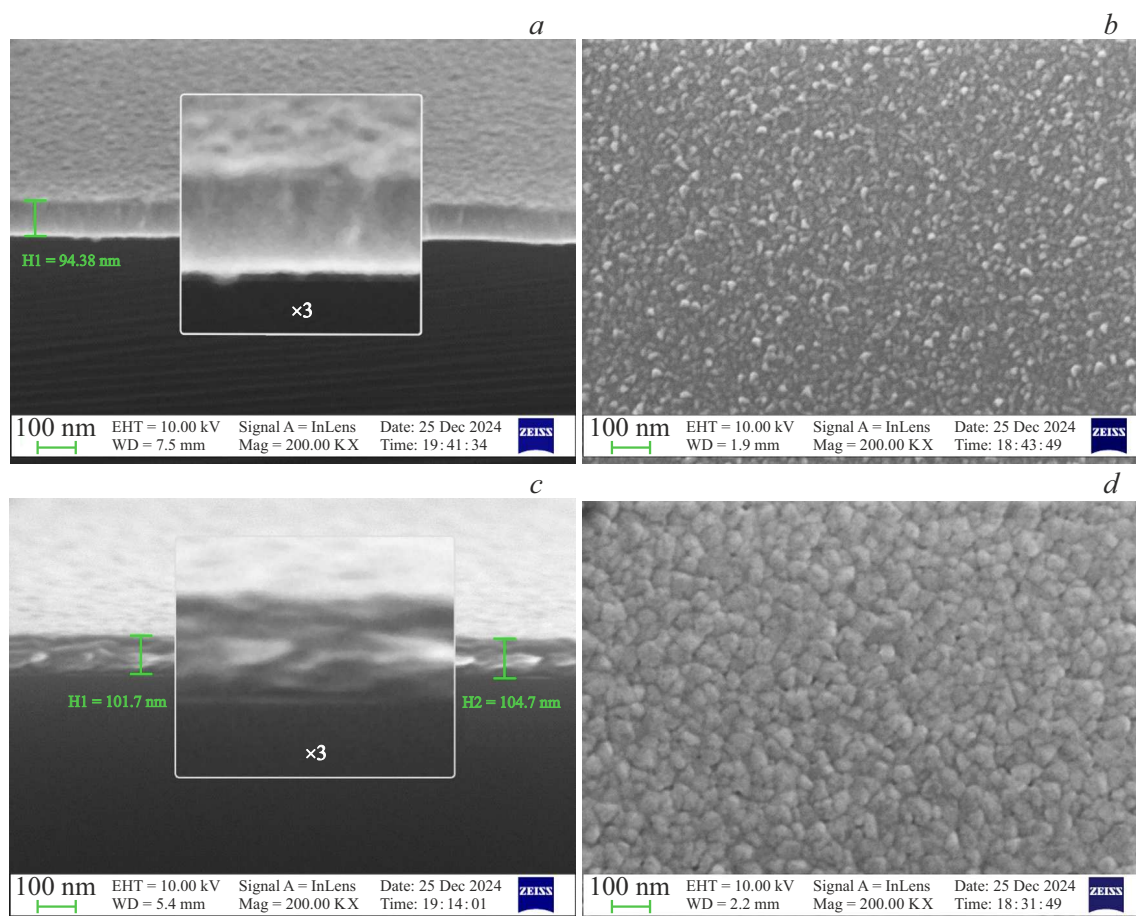


Рис. 1. SEM-изображения сколов (*a, c*) и поверхности (*b, d*) пленок, напыленных при 77 и при 300 К на монокристаллические кремниевые подложки (111).

роструктурой и составом тонких пленок. Традиционно металлические пленки выращивают в виде островков по механизму Volmer–Weber [6] методом термического вакуумного испарения или магнетронного распыления [7]. Для получения монокристаллических пленок применяют в основном молекулярно-пучковую эпитаксию. При формировании пленок алюминия они могут дополнительно быть насыщены кислородом при термическом осаждении, легированы кремнием и бором при магнетронном распылении в атмосфере азота. В режиме двухстадийного роста пленок за счет формирования на поверхности подложки переходных гомобуферных слоев достигается управление их микроструктурой, морфологией и шероховатостью поверхности при одном и том же ростовом методе [9]. Среднеквадратичная шероховатость (rms) поверхности пленки при магнетронном распылении обычно не менее 5–6 нм [8]. При термическом напылении величина шероховатости $\text{rms} \sim 1$ нм [9] может быть достигнута за счет формирования пленки на охлаждаемой до температур 77 К подложках. Рост тонких пленок сверхпроводников Sn, In, Al, Pb при криогенных температурах показал значительное (до 2 раз и более) увеличение температуры сверхпроводящего

перехода [10]. Исследование таких криогенных пленок ограничивается измерением их электрофизическими характеристиками без связи с их реальной структурой. Это обстоятельство не позволяет целенаправленно управлять ростовыми процессами сверхпроводящих тонких пленок с целью создания многослойных гетероструктур с заданными свойствами.

В представленной работе методом высоковакуумного термического испарения выращены тонкие Al пленки и SIS структура на подложке Si(111) при температуре 77 К и проведены исследования их структурных особенностей методами рентгеновской дифрактометрии и рефлектометрии (GIXRD, XRR), методами просвечивающей/растровой электронной микроскопии (TEM/STEM), энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (EDXS), а также методами сканирующей электронной (SEM) и атомно-силовой (AFM) микроскопии. Выполнены измерения температурных зависимостей сопротивления, определены температуры сверхпроводящего перехода и проведен анализ связи электрических параметров пленок с их структурными характеристиками.

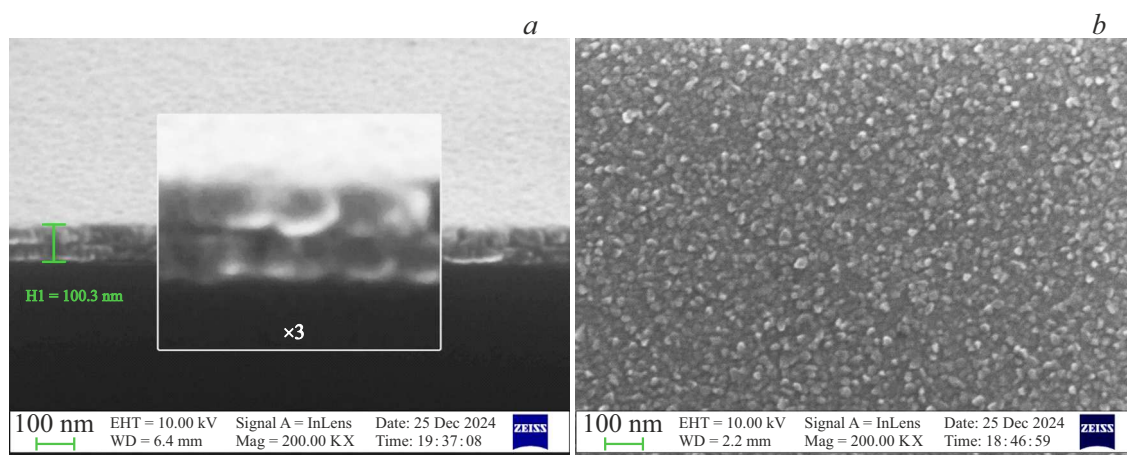


Рис. 2. SEM-изображения скола (а) и поверхности (b) алюминиевого СИС перехода, сформированного при 77 К. На вставке с увеличением $\times 3$ отчетливо темным виден диэлектрический слой.

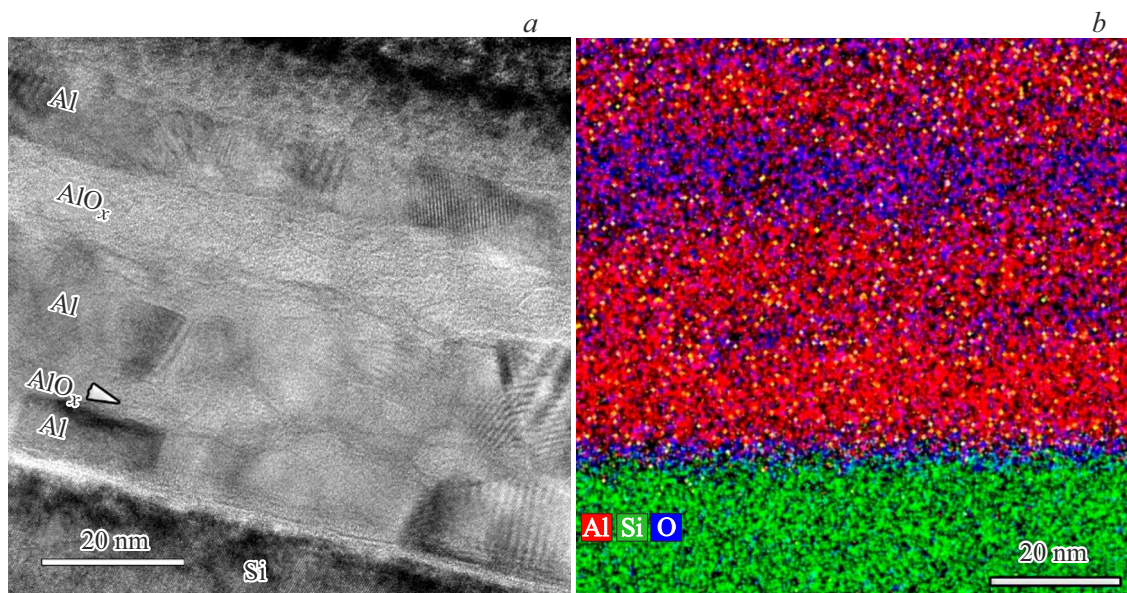


Рис. 3. TEM (а) и EDXS (b) элементное картирование 3х-слойной структуры, полученной вакуумным напылением с остановками субслоев Al при 77 К.

2. Эксперимент

Одной из задач нашего исследования является оптимизация формирования тонких пленок Al для уменьшения возможных утечек в SIS и SIN переходах, увеличения плотности тока и снижения удельной емкости путем уменьшения шероховатости и зернистости пленок. На рис. 1–3 представлены результаты исследования алюминиевых структур, полученных с помощью электронного микроскопа, изготовленных вакуумным термическим напылением на „горячие“ при 300 К и „криогенные“ при 77 К подложки Si(111). На сканирующем электронном микроскопе Carl Zeiss Ultra 55 проводились исследования топографии пленки, а также исследовались сколы

образцов. На SEM-изображениях (рис. 1) видно, что размеры зерен на поверхности криогенной пленки Al (рост на холодной подложке) составляют 10–20 нм (рис. 1, а, b), рост при комнатной температуре формирует зерна ~ 50 нм (рис. 1, с, d). Мелкозернистость и однородность криогенной пленки по сравнению с выращенной при 300 К хорошо видна при сравнении изображений их сколов (рис. 1, а и 1, с, соответственно).

Остаточное давление газов в напылительной камере позволяет не только изменять состав пленок [11], но и создавать многослойные структуры. Исследования многослойных структур были выполнены методами просвечивающей/растровой электронной микроскопии (TEM/STEM) и энергодисперсионной рентгеновской

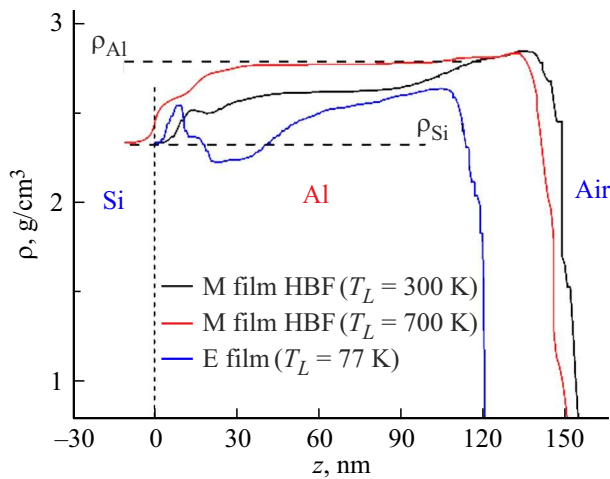


Рис. 4. Плотности алюминиевых пленок, напыленных на комнатную, горячую, холодную подложки.

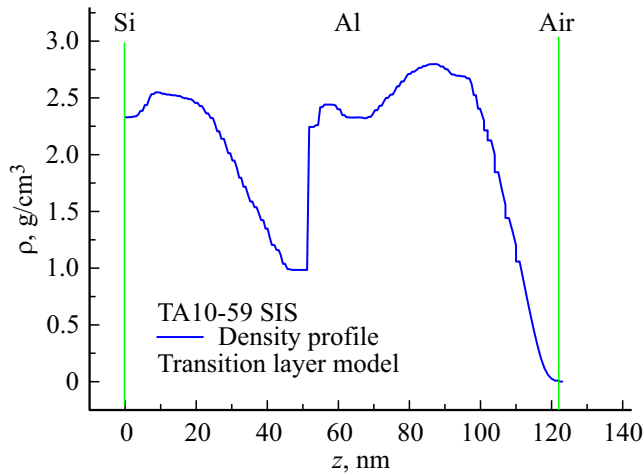


Рис. 5. Профиль по толщине плотности СИС структуры, напыленной на холодную подложку, в середине опускается до 1 g/cm^3 в области оксидного барьера. (рисунок подправлен)

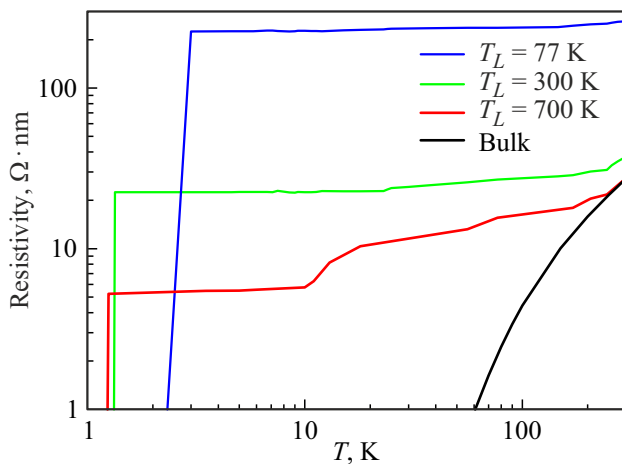


Рис. 6. Удельное сопротивление пленок, напыленных на подложки имеющими разную температуру (77, 300 и 700 K), а также отожженного объемного образца чистого алюминия (bulk) [12].

(EDXS) с использованием просвечивающего/растрового электронного микроскопа Osiris (Thermo Fisher Scientific, США), оборудованным EDXS SuperX (Bruker, Германия), при ускоряющем напряжении 200 kV. Поперечные срезы образцов были подготовлены методом фокусированного ионного пучка (FIB) по стандартной методике „lift-out“ в двухлучевом электронно-ионном микроскопе Scios (Thermo Fisher Scientific, США). На рис. 3, а представлено ТЕМ-изображение 3х-слойной пленки Al на Si(111), полученной во время роста при 77 K и с остановками между субслоями при остаточном вакууме $5 \cdot 10^{-6}$ mbar. Элементное EDXS картирование (рис. 3, б) демонстрирует три слоя Al (показаны красным цветом) с прослойками AlO_x (показаны синим цветом).

Пленки, напыленные на горячие подложки, имеют более крупный размер зерен и более высокую плотность, практически постоянную по толщине, в отличие от пленок на холодной подложке с более мелкими зернами, меньшей плотностью и менее равномерные по толщине (рис. 4, 5). Послойное напыление с паузами 10–20 секунд позволяет получать менее напряженные и менее деформированные пленки.

Все перечисленные структурные особенности криогенных пленок находят непосредственное отражение в температурных зависимостях сопротивления для разных методов изготовления, приведенных на рис. 6. Самое низкое удельное сопротивление $27 \Omega \cdot \text{nm}$ при комнатной температуре имеет массивный алюминий, у которого практически линейная зависимость сопротивления от температуры. А самое высокое удельное сопротивление при комнатной температуре $260 \Omega \cdot \text{nm}$ у пленки, напыленной при 77 K, которое практически не меняется вплоть до температуры сверхпроводящего перехода 2.3 K , что почти вдвое выше, чем для объемного образца $T_c = 1.18 \text{ K}$.

3. Обсуждение результатов

Согласно проведенным ранее исследованиям, эффективная площадь алюминиевого SIS перехода не превышает 10% от геометрической площади структуры [13]. Попробуем связать эффективную площадь туннельного перехода и структуру поверхности туннельного барьера. Можно предположить, что основные участки туннельной проводимости шероховатой пленки образуются на гранях и вершинах кристаллитов на поверхности пленки. При характерном значении удельного сопротивления туннельного перехода $1 \text{ k} \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ для величины кванта сопротивления $R_k = h/e^2 = 25.8 \text{ k} \Omega$ получим 26 квантовых точечных контактов, т.е. расположение в виде решетки 5×5 контактов на расстоянии порядка $200 \mu\text{m}$ один от другого. Здесь есть некоторое противоречие в применяемой терминологии, когда говорят pinholes [13], то обычно подразумевают микрозакоротки с непосредственным характером проводимости, тогда как в нашей интерпретации это наличие определенного

количества участков с более высокой прозрачностью туннельного барьера, которые и определяют транспортные свойства перехода. Другие области перехода имеют малую прозрачность, не вносят существенного вклада в проводимость, а вот их вклад в емкость оказывается сравним с участками с высокой прозрачностью, поскольку емкость линейно зависит от толщины барьера, тогда как проводимость имеет экспоненциальную зависимость. Вклад в критический ток от каждого канала можно оценить как $I_n = (e^2/2h)V_\Delta T_n$, где T_n прозрачность каждого канала [14]. Если реализовать менее шероховатую мелкокристаллическую пленку, то можно рассчитывать на увеличение числа каналов проводимости, увеличение критического тока, снижение сопротивления и снижение емкостного параметра ωRC .

Что касается оценок остаточного удельного сопротивления пленок, то здесь можно рассмотреть несколько моделей. В простейшей модели Андриуса [15] удельное сопротивление $\omega_T = \omega_0 + A_T/d$ обратно пропорционально размеру кристаллита d и прямо пропорционально температурно-зависимому коэффициенту Андриуса (A_T).

В модели Майадаса–Шацкеса [16] дополнительно используется коэффициент отражения от межзеренной границы R . Зависимость обратного удельного сопротивления $\rho_0/\rho_{ms} = 1 - 1.5\alpha + 3\alpha^2$, где $\alpha = (l_0/d)(R/(1 - R))$. Для алюминия обычно считают, что $R = 0.7-0.9$ и зависит от ориентации кристаллита. Пленки с более высоким удельным сопротивлением будут обладать более высокой кинетической индуктивностью, которую можно описать простой формулой для кинетической индуктивности на квадрат пленки [17]

$$L_k = \hbar R_n / (\pi \Delta_0) = \hbar R_n / (1.76 \pi k T_c),$$

где R_n — сопротивление на квадрат пленки, Δ_0 — энергетическая щель. В этом случае можно получить значительное увеличение кинетической индуктивности L_k без необходимости формировать очень тонкие пленки менее 5 нм. В нашем случае при увеличении сопротивления почти на порядок и T_c в два раза будет эквивалентно уменьшению толщины в 20 раз, т.е. пленка 100 нм будет иметь кинетическую индуктивность как пленка толщиной 5 нм. Для сравнения приведем сравнение с пленкой NbTiN 10 нм $L_k = 25$ пН/кв, наш алюминий 100 нм 2.7 пН/кв и 10 нм 27 пН/кв, т.е. можно реализовать сравнимые параметры с использованием алюминиевой технологии, совместимой с применяемой для создания кубитов и квантовых компьютеров. Литературные данные по напылению на холодную подложку оказываются плохо совместимыми с нашими приведенными результатами, так как подложки либо охлаждались парами жидкого азота и находились при температурах выше 100 К, либо напылялись на охлаждаемые жидким гелием подложки, измерялись при тех же 4.2 К и необратимо рекристаллизовывались (отжигались) при отогреве до комнатной температуры и теряли как высокое удельное сопротивление, так и высокую температуру сверхпроводящего перехода.

4. Заключение

Ранее было показано, что предварительное формирование на границе с подложкой магнетронных островковых гомобуферных (HBL) слоев толщиной 20–40 нм позволяет управлять микроструктурой тонких гомобуферных (HBF) пленок и их механическими свойствами. Проведенные исследования структуры пленок методами AFM, SEM, TEM, EDXS, XRD и XRR демонстрируют корреляцию микроструктуры и электрических характеристик Al пленок, выращенных при разных условиях. Показано, что магнетронная 150 нм пленка Al/Si(111) с гомобуферным слоем (рост при $T_L = 700$ К), состоящая из однородных плотно упакованных зерен-кристаллитов, имеет постоянную плотность по толщине. Для сравнения приведен профиль распределения плотности по толщине для Al пленки HBF-300, сформированной при температуре 300 К. Совокупный анализ полученных данных показывает, что уменьшение количества межзеренных границ в объеме HBF-700 пленки приводит ее сопротивлению при комнатной температуре к электросопротивлению массивного образца, а также к минимальным значениям для исследованных пленок. Альтернативный вариант представляют криогенные пленки. При послойном напылении на охлаждаемую до 77 К подложку Si происходит значительное возрастание остаточного сопротивления R_0 и температуры сверхпроводящего перехода T_c несмотря на снижение шероховатости поверхности до 0.5–1 нм. Размер кристаллитов (зерен) в пленках изменяется от 15 до 140 нм для высокоомных и самых низкоомных, соответственно. Описанные технологии предназначены для улучшения характеристик SIS и SIN переходов, повышения рабочих частот устройств на их основе. Высокоомные алюминиевые пленки могут найти применение для создания резонаторов, параметрических усилителей бегущей волны, детекторов на кинетической индуктивности, и других высокочувствительных СВЧ устройств. Для формирования туннельных переходов предпочтительной может оказаться технология роста квазиэпитаксиальных пленок на горячих островках, тогда как для устройств с кинетической индуктивностью — напыление на охлаждаемые подложки.

Благодарности

Образцы изготовлены с использованием оборудования УНУ „Криоинтеграл“, поддерживаемой за счет государственного задания ИРЭ им. В.А. Котельникова РАН. Авторы благодарят Чекушина Макара Владимировича за помощь в ремонте оборудования.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке гранта РНФ № 23-79-00022, <https://rscf.ru/project/23-79-00022>.

Конфликт интересов

Авторы сообщают об отсутствии конфликта интересов.

Список литературы

- [1] A. Braginski. *J. Supercond. Nov. Magn.* **32**, 23–44 (2019). DOI: 10.1007/s10948-018-4884-4
- [2] J. Zmuidzinas, A. Karpov, D. Miller, F. Rice, H. Leduc, J. Pearson, J. Stern. In *Far-IR, Sub-mm and MM Detector Technology Workshop* (2002, April).
- [3] T. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe, J. O'Brien. *Nature* **464**, 45–53 (2010).
- [4] M. Tarasov, A. Gunbina, A. Chekushkin, R. Yusupov, V. Edelman, V. Koshelets. *Appl. Sci.* **12**, 20, 10525 (2022).
- [5] M. Tarasov, L. Kuzmin, N. Kaurova. *Instrum. Exp. Tech.* **52**, 877–881 (2009). DOI: 10.1134/S0020441209060220.
- [6] N. Kaiser. *Appl. Opt.* **41**, 16, 3053–3060 (2002).
- [7] M. Ohring. *The Material Science of Thin Films*. Academic Press, San Diego, Calif, USA (1992).
- [8] A. Lomov, D. Zakharov, M. Tarasov, A. Chekushkin, A. Tatarintsev, D. Kiselev, T. Ilyina, A. Seleznev. *Techn. Phys.* **69**, 6, 1636–1645 (2024). DOI: 10.1134/S1063784224060239
- [9] M. Strelkov, A. Chekushkin, M. Fominsky, R. Kozulin, S. Kravetsky, A. Tatarintsev, D. Zakharov, A. Lomov, M. Tarasov. *Phys. Solid State* **66**, 7, 1006–1008 (2024). DOI: 10.61011/PSS.2024.07.58966.35HH
- [10] W. Buckel. *Physica* **126B**, 1–7 (1984).
- [11] К. Окура, В.Г. Лифшиц, А.А. Саранин, А.В. Зотов, М. Катаяма. *Введение в физику поверхности* (2 глава стр. 46). Наука, М. (2006). 490 с. ISBN 5-02-034355-2
- [12] P. D'esai, H. James, C. Ho. *J. Phys. Chem. Ref. Data* **13**, 1131 (1984).
- [13] T. Greibe, M. Stenberg, C. Wilson, T. Bauch, V. Shumeiko, P. Delsing. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 097001 (2011).
- [14] D. Willsch, D. Rieger, P. Winkel, et al. *Nat. Phys.* **20**, 815–821 (2024). DOI: 10.1038/s41567-024-02400-8.
- [15] P.V. Andrews, M.B. West, C.R. Robeson. *Phil. Mag.* **19**, 161, 887–898 (1968). <https://doi.org/10.1080/14786436908225855>
- [16] A.F. Mayadas, M. Shatzkes. *Phys. Rev. B* **1**, 1382 (1970).
- [17] S. Doyle. *Lumped Element Kinetic Inductance Detectors*. PhD thesis (University of Car-diff, 2008).

Редактор А.Н. Смирнов