

02,08

Тонкие пленки алюминия, нанесенные на охлаждаемые жидким азотом подложки

© М. Стрелков¹, А. Чекушкин¹, М. Фоминский¹, Р. Козулин¹, С. Краевский²,
А. Татаринцев³, Д. Захаров³, А. Ломов³, М. Тарасов¹

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

² Институт медикобиологической химии им. В.Н. Ореховича,
Москва, Россия

³ Физико-технологический институт им. К.А. Валиева РАН,
Москва, Россия

E-mail: strelkov.mv@phystech.edu

Поступила в Редакцию 18 апреля 2024 г.

В окончательной редакции 18 апреля 2024 г.

Принята к публикации 8 мая 2024 г.

Исследована микроструктура пленок алюминия, термически напыленных на монокристаллические кремниевые подложки при температуре жидкого азота и при комнатной температуре. Приведены результаты исследования морфологии и микроструктуры пленок методами рентгеновской дифракции, атомно-силовой и электронной микроскопии. Показано, что среднеквадратичная шероховатость снижается с 0.4–1.2 до 0.19–0.34 nm при охлаждении подложки от комнатной температуры до температуры жидкого азота.

Ключевые слова: тонкие пленки, морфология поверхности, структура пленки, сверхпроводимость, СИС-переход, кристаллическая структура.

DOI: 10.61011/FTT.2024.07.58369.35NN

1. Введение

Проблема качества сверхпроводниковых туннельных переходов на основе алюминия связана с морфологией поверхности пленок [1]. Возникает задача развития доступных методов роста пленок для управления морфологией их поверхности. Метод молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) позволяет проводить рост эпитаксиальных пленок алюминия с атомарно гладкой поверхностью, однако данная технология плохо применима для массового производства. Существуют два альтернативных подхода к решению проблемы создания атомарно гладких пленок: напыление методом квази-эпитаксии пленок при температурах подложки $T \geq 0.5T_{\text{mp}}$ (T_{mp} — температура плавления напыляемого металла), как в [2], либо напыление пленок на охлаждаемую подложку, как в [3].

В настоящей работе приведено исследование микроструктуры и морфологии поверхности пленок алюминия, нанесенных на кремниевые подложки, охлаждаемые жидким азотом.

2. Эксперимент

Пленки Al на монокристаллических и подложках были получены методом термического напыления на установке Leybold Heraeus Z-400. Для напыления на монокристаллическую подложку использовались стандартные пластины Si(111) с четырехградусной разориентацией.

Рост пленок проходил при комнатной температуре 293 К и температуре жидкого азота 77 К. Для предотвращения осаждения влаги на подложку при криогенных температурах в камере была установлена азотная ловушка. Охлаждение подложки происходило за счет пропускания жидкого азота через трубку, на которую был напаян держатель подложки. Охлаждение держателя начиналось за минуту до начала напыления пленки и продолжалось во время ее роста. Процесс формирования пленки проходил со скоростью 0.4–0.6 nm/s. Обозначения образцов и условия роста пленок Al представлены в табл. 1.

Морфология поверхности, однородность и толщина пленок алюминия были изучены методом SEM на сканирующем электронном микроскопе Carl Zeiss Ultra 55. Контроль за составом пленок проводился с применением энергодисперсионного спектрометра (EDS) рентгеновского излучения Oxford Instrument INCA X-act. Энергия электронного пучка составляла 5 и 20 keV в режиме микроанализа и получения изображений сколов соответственно.

Фазовый анализ (XRD) образцов пленок Al/Si(111) проводился на рентгеновском дифрактометре SmartLab (Rigaku, Япония) с 9 kW вращающимся Cu-анодом. Записи дифрактограмм в схеме сканирования $2\theta/\omega$ и 2θ выполнялась при использовании параллельного рентгеновского пучка CBO с расходимостью 0.00087 rad. Определение толщины и профиля плотности пленок было проведено методом рентгеновской рефлектометрии (XRR). Для записи кривых XRR на дифрактометре

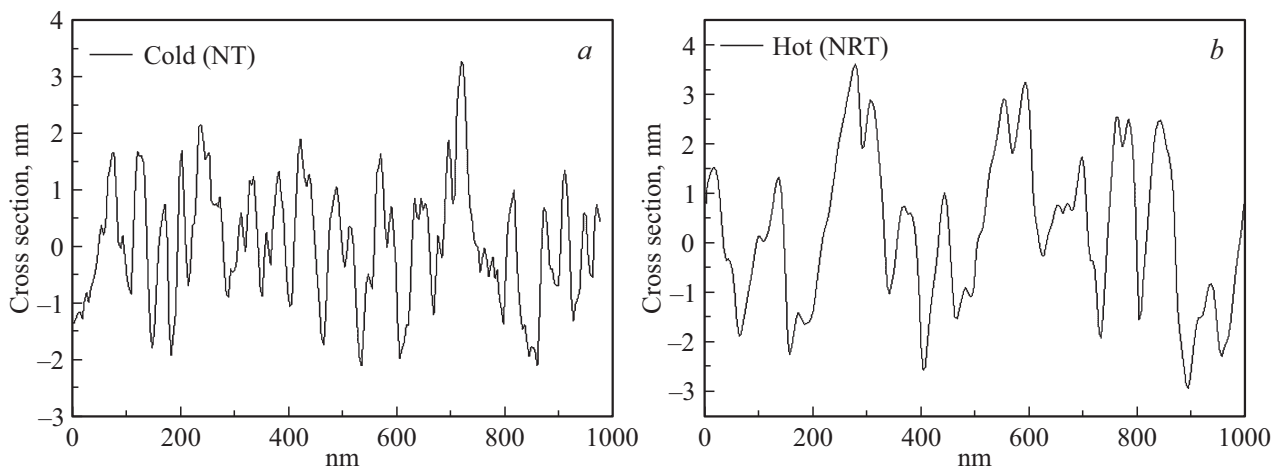


Рис. 1. АСМ-профили поверхности образцов пленок Al/Si(111), напыленных при охлаждении подложки жидким азотом — NT (a) и без охлаждения — RT (b).

Таблица 1. Условия термического напыления пленок Al на Si(111)

Номер образца	Подложка	Температура подложки, К	Скорость напыления, nm/s	Давление напыления, Торр
TA8-10	Si(111)	77–100	0.6	$0.54 \times 1E-5$
TA8-11	Si(111)	293	0.46	$0.53 \times 1E-5$

дополнительно устанавливался двухкратный щелевой монохроматор Ge(220). Моделирование кривых XRR выполнялось программой GlobalFit (Rigaku).

Для проверки изготовленных затравочных слоев и окончательного роста пленок мы использовали атомно-силовую микроскопию (АСМ). АСМ-измерения проводились с использованием микроскопа Dimension Icon (Bruker), оснащенного коммерческими кантилеверами RTESPA-300, в режиме QNM, на воздухе. Наконечник кантилевера изготовлен из кремния с номинальным радиусом 8 nm, резонансной частотой 300 kHz и предварительно откалиброванной (Bruker) номинальной жесткостью 40 N/m. Частота сканирования составляла 1 Hz, а заданное значение пикового усилия составляло ~ 3 nN. Направление линейного сканирования — прямое. Площадь сканов составляла $1 \times 1 \mu\text{m}^2$. Обработка АСМ изображений осуществлялась в программе Gwyddion. Фильтрация включала стандартные операции по вычитанию поверхности 3-го порядка, удалению ступеней по направлению X, удалению царапин.

В качестве оценочной величины шероховатости поверхности оценивался параметр rms для всей площади скана. Для количественной характеристики латерального размера неоднородностей поверхности применялась автокорреляционная функция. Она строилась на основе обработки изображений поверхности пленок программой wsxm.eu (WSxM v5.0 Develop 10.2).

Микроструктура пленок и морфология их поверхности были изучены методами рентгеновской рефлектометрии, дифрактометрии, сканирующей электронной и

Таблица 2. Шероховатость пленки от температуры в зависимости от температуры подложки при напылении

Температура	σ_{rms} (nm)	σ_{max} (nm)
77 K	0.19–0.34	0.8–2.5
293 K	0.42–1.2	1.5–4.7

атомно силовой микроскопией. Результаты экспериментов показывают, что пленки алюминия с толщинами порядка 100 nm, напыленные на охлаждаемую подложку, по сравнению с пленками, наносимыми при комнатной температуре, являются менее шероховатыми. Наиболее гладкая пленка получилась на охлажденной кремниевой подложке с ориентацией $\langle 111 \rangle$. Такие пленки предназначены для изготовления СИС и СИН туннельных переходов. Первичный анализ поверхности проводился методом атомно-силовой микроскопии. Сечения пленок, напыленных при различных температурах подложки приведены на рис. 1.

В табл. 2 приведены усредненные значения среднеквадратичной шероховатости σ_{rms} и максимальной σ_{max} по разным сканам и образцам для пленок толщиной 100 nm.

Электронная микроскопия торцов пленок приведена на рис. 2. Видно, что поверхность пленки, напыленной на холодную подложку, более гладкая.

На рис. 3 показаны рентгеновские дифрактограммы от пленок Al в геометрии GIXRD (a) и XRD (b).

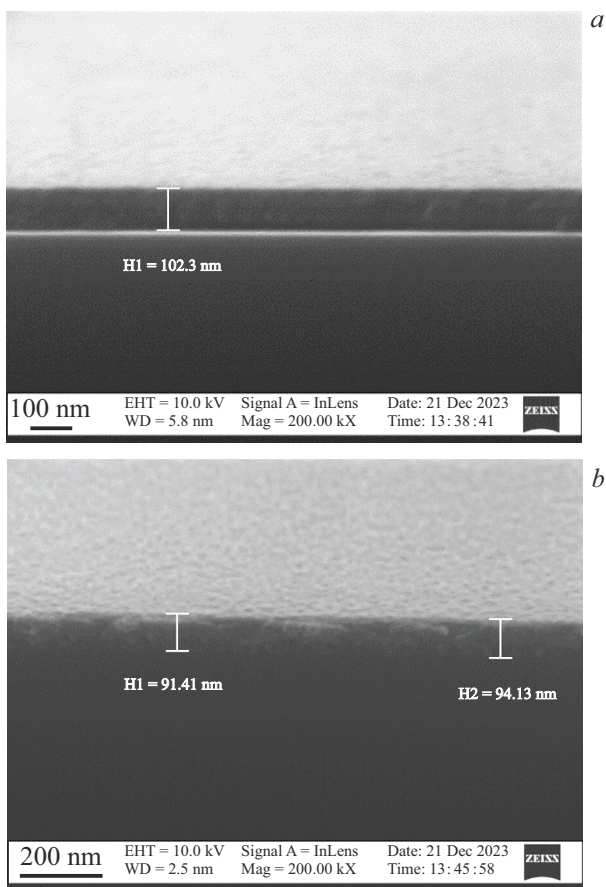


Рис. 2. Изображение сколов пленок, напыленных при 77 К (а) и 293 К (b).

Анализ дифрактограмм показывает, что RT и NT пленки алюминия на Si(111) являются поликристаллическими. Пленки обладают ярко выраженной текстурой (001), практически наблюдается только одно отражение 002

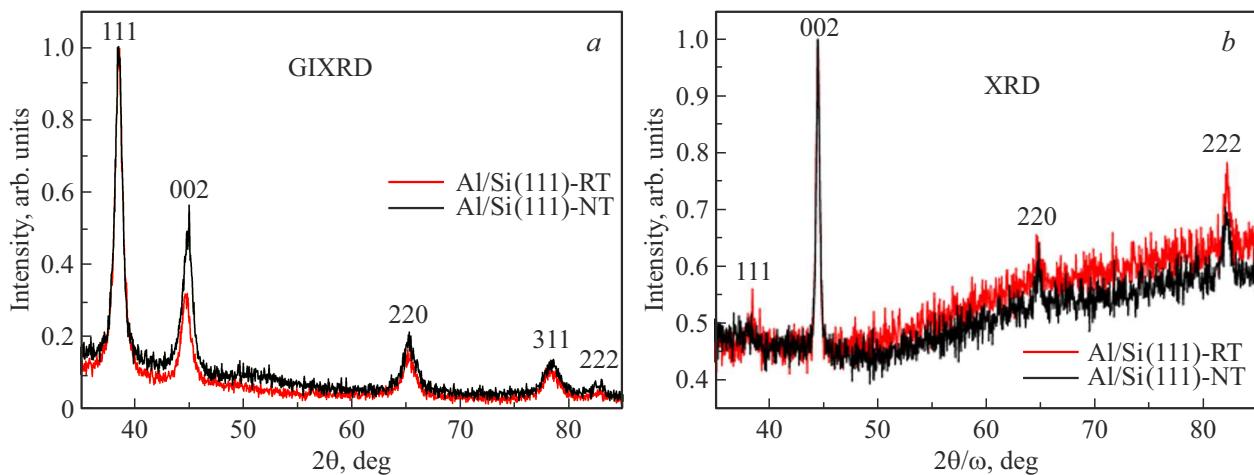


Рис. 3. Дифрактограммы пленок Al, напыленных на подложку Si(111) (a, b) и на SiO₂/Si(001), записанные в геометрии XRD (a) и — GIXRD при угле скольжения $\varphi = 0.5^\circ$ (b).

(рис. 3, b). Полуширины соответствующих дифракционных пиков (размер кристаллитов) для исследуемых пленок практически равны. Вид записанных дифрактограмм заметно отличается от дифрактограмм для пленок Al с текстурой (111), получаемых методом магнетронного распыления. Отметим, что в наших пленках преобладают кристаллиты 001, поверхность которых параллельна поверхности подложек Si(111). Наличие большого количества кристаллитов Al{001} коррелирует с уменьшением величины шероховатости поверхности, например, до rms ~ 0.25 nm для пленки Al (NT = 77°K).

На крупных частицах (рис. 1, b) наблюдается много „рожек“ — отдельных частиц с размерами 15–20 nm. Размер крупных частиц порядка 50 nm. В NT-пленке средний размер частиц ~ 10 –15 nm. Важно отметить, в АСМ это изображение только слоя на поверхности толщиной 5 nm. Дифракция происходит на отдельных кристаллитах, поскольку в нашем случае влиянием размеров частиц можно пренебречь. Латеральные дифракционные размеры кристаллитов равны 9–11 nm, что хорошо коррелирует с данными АСМ. Размеры кристаллитов в нашем случае в большей степени определяются энергией осаждаемых атомов, чем температурой подложки. Подложка же, находясь при комнатной температуре, добавляет энергии адатомам алюминия, что способствует коагуляции кристаллитов в более крупные частицы (сростки). По-видимому, это и приводит к увеличению шероховатости для RT-пленок.

3. Заключение

Напыление пленок алюминия на охлаждаемые жидким азотом монокристаллические подложки кремния Si(111) позволяет практически в два раза снизить шероховатость пленки, по сравнению с напылением на подложку при комнатной температуре, и достичь величины шероховатости поверхности rms ~ 0.25 nm.

Финансирование работы

Разработка и изготовление образцов выполнены в ИРЭ РАН при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант 23-79-00022, <https://rscf.ru/project/23-79-00022/>. При выполнении работ использовано оборудование Уникальной научной установки № 352529.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] S. Fritz, L. Radtke, R. Schneider, M. Weides, D. Gerthsen. *J. Appl. Phys.* **125**, 16, 165301 (2019).
- [2] M. Tarasov, A. Lomov, A. Chekushkin, M. Fominsky, D. Zakharov, A. Tatarintsev, S. Kraevsky, A. Shadrin. *Nanomaterials* **13**, 2002 (2023). <https://doi.org/10.3390/nano13132002>
- [3] Д.А. Калачева. Сверхпроводниковые устройства с нелинейной кинетической индуктивностью на основе гибридных структур из тонких пленок алюминия. Дис. к.ф.-м.н.(2023).

Редактор Т.Н. Василевская