Морфология и электрические параметры тонких алюминиевых пленок, осаждаемых на подложки при температурах от 77 до 800 К

© М.А. Тарасов¹, А.А. Ломов², А.М. Чекушкин¹, А.А. Татаринцев², Б.М. Середин³, М.А. Маркина¹, Е.Ф. Позднякова⁴, А.Д. Голованова⁴, М.В. Стрелков¹, Д.С. Жогов¹, Р.К. Козулин¹, К.Ю. Арутюнов⁴

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

² Физико-технологический институт им. К.А. Валиева РАН, НИЦ "Курчатовский институт", Москва, Россия

³ Южно-Российский государственный политехнический университет (НПИ) им. М.И. Платова, Новочеркасск, Россия ⁴ Национальный исследовательский университет "Высшая школа экономики", Москва, Россия

E-mail: tarasov@hitech.cplire.ru

05

Поступило в Редакцию 15 октября 2024 г. В окончательной редакции 25 октября 2024 г. Принято к публикации 27 октября 2024 г.

Выполнены экспериментальные исследования базовых параметров пленок алюминия толщиной 150 nm на подложках Si(111), SiO₂/Si(001). Пленки получены методами магнетронного распыления и термического испарения в диапазоне температур от 77 до 800 К. Для охлаждения подложки до температуры жидкого азота изготовлена вакуумная вставка в установку Z400, а для нагрева до 800 К использован штатный нагреватель установки Kurt Lesker. Установлено, что криогенное осаждение адатомов алюминия по сравнению с напылением на горячую подложку позволяет снизить размер формируемых зерен с 280 до 15–20 nm, а величину шероховатости с 5.4 до 1.7 nm. Удельное сопротивление пленок и температура сверхпроводящего перехода T_c возрастают с 27 до 260 Ω ·nm и с 1.2 до 2.3 К соответственно. Это связано с увеличением числа межзеренных границ в криогенных Аl-пленках и может привести к возрастанию их кинетической индуктивности в 20 раз и более.

Ключевые слова: тонкие пленки, алюминий, удельное сопротивление, температура сверхпроводящего перехода, сканирующая электронная микроскопия, атомная силовая микроскопия.

DOI: 10.61011/PJTF.2025.04.59843.20149

Тонкие пленки на основе алюминия находят широкое применение в различных приложениях: от коррозийных покрытий, микро- и оптоэлектроники до элементов квантовых компьютеров. Особый интерес к ним обусловлен задачей создания компактных сверхпроводящих устройств на основе туннельных переходов. Увеличение критической температуры перехода металлических пленок в сверхпроводящее состояние является одной из приоритетных задач при отработке методик роста. Известно, что для достижения этой цели при формировании пленок алюминия может быть применен ряд методов: термическое испарение в атмосфере кислорода, напыление с допированием кремния, магнетронное распыление в атмосфере азота. Важным электрофизическим параметром тонких пленок является их кинетическая индуктивность, зависящая от их микроструктуры. В нашей работе [1] была показана возможность управления микроструктурой тонких пленок алюминия за счет формирования на поверхности подложки кремния переходных гомобуферных слоев. В настоящей работе представлены результаты измерения электрических параметров и морфологии поверхности пленок алюминия с общей толщиной 150 nm. Образцы пленок серии М, выращенные методом магнетронного распыления на подложках Si(111) при 300 K, имели переходные гомобуферные слои толщиной 20-40 nm, сформированные при температурах от 300 до 800 К аналогично [1]. Пленки алюминия серии Е были сформированы методом термического испарения на подложках Si(111) и оксидированных кремниевых подложках $SiO_2/Si(001)$ при 77 и 300 К. Изображения сколов пленок алюминия, полученные в электронном микроскопе, приведены на рисунке, а их характерные размеры представлены в таблице.

Исследование вопроса взаимосвязи между удельным сопротивлением тонких пленок и их морфологией, строением продолжается десятилетиями [2-11]. В самой ранней модели Томсона [3] рассматривалась геометрическая модель для электронов, отражающихся от двух поверхностей пленки толщиной t при постоянной длине свободного пробега λ. Более поздняя модель Фукса-Зондгеймера [4,5] уже учитывала статистическое распределение λ и морфологию поверхности пленки. В современную модель Майадаса-Шацкеса [6,7] добавились прозрачность границ зерен и их средний размер. В подробном обзоре, посвященном вкладу границ зерен в металле [8], рассматривается альтернативная феноменологическая модель Андрюса [9], согласно которой удельное сопротивление обратно пропорционально среднему диаметру зерна и постоянная пропорциональности называется параметром Андрюса.

В модели Майадаса–Шацкеса используется коэффициент отражения от межзеренной границы *R*. Зависимость



СЭМ-изображения скола пленок алюминия после магнетронного распыления (a, b) и термического испарения (c, d). a - M-300/300/Si(111), b - M-700/300/Si(111), c - E-77/Si(111), d - E-300/Si(111).

обратного удельного сопротивления

$$\rho_0/\rho_{ms}=1-1.5\alpha+3\alpha^2,$$

где ρ_0 — удельное сопротивление массивного алюминия, ρ_{ms} — удельное сопротивление по модели Майадаса-Шацкеса, $\alpha = (l_0/d)(R/(1-R)), l_0$ — длина свободного пробега электронов, d — размер зерна в мелкозернистой пленке. Для алюминия обычно считается, что коэффициент отражения составляет R = 0.7-0.9 и зависит от ориентации [10]. Влияние внутреннего размерного эффекта, обусловленного поликристаллической структурой металлических пленок, на коэффициенты отражения, прохождения и поглощения электромагнитных волн было изучено в работе [11].

Морфология поверхности образцов пленок исследовалась методами сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) и атомной силовой микроскопии (АСМ). Усредненные значения размеров зерен по данным примененных методик измерения и сопротивлений на квадрат пленок толщиной 150 nm приведены в таблице. Температурные зависимости удельного сопротивления и значения критической температуры сверхпроводящего

Письма в ЖТФ, 2025, том 51, вып. 4

перехода измерялись в криостате замкнутого цикла HELIOX-AC-V (Oxford Instruments) сорбционного типа на ³Не с минимальной температурой 280 mK.

Из таблицы следует, что наиболее крупнозернистые $(250 \pm 30 \text{ nm})$ и шероховатые $(\text{RMS} = 5.0 \pm 0.5 \text{ nm})$ пленки серии М были получены при напылении на гомобуферный слой, сформированный при температурах подложки 300-500 К. Наиболее гладкие пленки серии Е с размером зерен $20 \pm 5 \,\text{nm}$ и RMS = $1.7 \pm 0.3 \,\text{nm}$ получены при напылении на охлаждаемую жидким азотом подложку Si(111). Наибольшая температура сверхпроводящего перехода получена у самой мелкозернистой пленки E-77/Si(111). Сходное повышение критической температуры алюминия было получено в [12] при напылении в атмосфере кислорода и при напылении с добавлением кремния. Известно, что на свойствах пленок Al сильно сказывается наличие в них примеси кислорода и углерода. Следует отметить, что пленки с более высоким удельным сопротивлением будут обладать более высокой кинетической индуктивностью, которую можно описать простой формулой для кинетической

Обозначение образца	Шерохо-	Размер зерна, nm	Удельное сопротивление, Ω·nm		Критическая
	ватость RMS, nm		при 300 К	при 77 К	температура <i>T_c</i> , К
M-800/300/Si(111)	4.2 ± 0.5	170	33	12	
M-700/300/Si(111)	4.1 ± 0.5	160	27	9	
M-600/300/Si(111)	4.7 ± 0.5	150	45	10	
M-500/300/Si(111)	5.4 ± 0.5	230	45	10	1.22 ± 0.05
M-400/300/Si(111)	5.0 ± 0.5	250	45	10	
M-300/300/Si(111)	4.3 ± 0.5	280	37	9	1.20 ± 0.05
E-77/Si(111)	1.7 ± 0.3	15	96	74	2.30 ± 0.05
E-77/SiO ₂	2.6 ± 0.3	45	260	230	2.20 ± 0.05
E-300/Si(111)	1.5 ± 0.3	20	96	63	1.25 ± 0.05
E-300/SiO ₂	1.3 ± 0.3	54	220	180	

Параметры морфологии поверхности и величины электрических сопротивлений алюминиевых пленок, выращенных методом магнетронного распыления (M) и термического испарения (E)

Примечание. В обозначениях образцов числами указаны температуры осаждения (в К): для образцов серии М первое число соответствует температуре формирования переходных гомобуферных слоев, второе — температуре подложки при напылении основной пленки, для образцов серии Е приведена температура подложки при напылении пленки.

индуктивности на квадрат пленки

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

где R_n — сопротивление на квадрат пленки, Δ_0 энергетическая щель. В этом случае можно получить значительное увеличение кинетической индуктивности L_k без необходимости формирования очень тонких пленок (менее 5 nm). В нашем случае увеличение сопротивления почти на порядок и Т_с в 2 раза будет эквивалентно уменьшению толщины в 20 раз, т.е. пленка 100 nm будет иметь такую же кинетическую индуктивность, как пленка толщиной 5 nm. Тенденция увеличения разупорядочения аморфной пленки может быть продолжена вплоть до критической температуры 5 К, но дальнейшее увеличение будет приводить к снижению *Т*_с для очень разупорядоченных пленок [13–15]. Еще одним важным свойством мелкозернистых пленок может оказаться уменьшение длины неупругой релаксации, что влияет на эффективность охлаждения сверхпроводника и улучшение характеристик электронных охладителей на основе туннельных переходов сверхпроводникизолятор-нормальный металл [16].

Исследованные пленки алюминия. напыленные на охлаждаемые жидким азотом подложки, могут применяться для создания более компактных сверхпроводниковых микроволновых резонаторов, высокочувствительных детекторов на основе туннельных переходов сверхпроводник-изоляторсверхпроводник сверхпроводник-изолятор-И нормальный металл-изолятор-сверхпроводник с более широким температурным интервалом и динамическим диапазоном, а также более эффективных электронных охладителей на основе туннельных переходов сверхпроводник-изолятор-нормальный металл.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (грант 075-15-2024-482).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- M. Tarasov, A. Lomov, A. Chekushkin, M. Fominsky, D. Zakharov, A. Tatarintsev, S. Kraevsky, A. Shadrin, Nanomaterials, 13 (3), 2002 (2023).
 DOI: 10.3390/nano13132002
- [2] P.V. Andrews, Phys. Lett., 19 (7), 558 (1965).
- DOI: 10.1016/0031-9163(65)90776-6
- [3] J.J. Thomson, Proc. Cambridge Philos. Soc., **11**, 120 (1901).
- [4] K. Fuchs, Math. Proc. Cambridge Philos. Soc., **34** (1), 100 (1938). DOI: 10.1017/S0305004100019952
- [5] E.H. Sondheimer, Adv. Phys., 1 (1), 1 (1952).
 DOI: 10.1080/00018735200101151
- [6] A.F. Mayadas, M. Shatzkes, J.F. Janak, Appl. Phys. Lett., 14 (11), 345 (1969). DOI: 10.1063/1.1652680
- [7] A.F. Mayadas, M. Shatzkes, Phys. Rev. B, 1 (4), 1382 (1970).
 DOI: 10.1103/PhysRevB.1.1382
- [8] I. Bakonyi, Eur. Phys. J. Plus., 136 (4), 410 (2021).
 DOI: 10.1140/epjp/s13360-021-01303-4
- [9] P.V. Andrews, M.B. West, C.R. Robeson, Phil. Mag., 19 (161), 887 (1968). DOI: 10.1080/14786436908225855
- [10] M.A. Schneider, M. Wenderoth, A.J. Heinrich, M.A. Rosentreter, R.G. Ulbrich, Appl. Phys. Lett., 69 (9), 1327 (1996). DOI: 10.1063/1.117583
- [11] И.И. Пятайкин, Журнал радиоэлектроники [Электронный журнал], № 10 (2020). DOI: 10.30898/1684-1719.2020.10.5
- [12] М.А. Тарасов, Л.С. Кузьмин, Н.С. Каурова, ПТЭ, № 6, 122 (2009). [М.А. Тагазоv, L.S. Kuzmin, N.S. Kaurova, Instrum. Exp. Tech., 52 (6), 877 (2009). DOI: 10.1134/S0020441209060220].

- [13] А.М. Финкельштейн, Письма в ЖЭТФ, **45** (1), 37 (1987). [A.M. Finkel'stein, JETP Lett., **45** (1), 46 (1987).].
- [14] A.M. Finkel'stein, Physica B, **197** (1-4), 636 (1994). DOI: 10.1016/0921-4526(94)90267-4
- [15] Д.С. Антоненко, М.А. Скворцов, Письма в ЖЭТФ,
 112 (7), 466 (2020). DOI: 10.31857/S1234567820190064
 [D.S. Antonenko, М.А. Skvortsov, JETP Lett., 112 (7),
 428 (2020). DOI: 10.1134/S0021364020190017].
- [16] A.S. Vasenko, F.W.J. Hekking, J. Low Temp. Phys., 154 (5-6), 221 (2009). DOI: 10.1007/s10909-009-9869-z