

02,13

## Сверхпроводящие пленки и туннельные переходы на основе алюминия

© М.А. Тарасов<sup>1</sup>, А.М. Чекушкин<sup>1</sup>, М.Ю. Фоминский<sup>1</sup>, Д.М. Захаров<sup>2</sup>, А.А. Ломов<sup>2</sup>, О.В. Девецкий<sup>3,4</sup>, А.А. Гунбина<sup>5</sup>, Е.Т. Сохина<sup>6,7</sup>, В.С. Эдельман<sup>7</sup>

<sup>1</sup> Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия

<sup>2</sup> Физико-технологический институт им. К.А. Валиева РАН, Москва, Россия

<sup>3</sup> Федеральный исследовательский центр Южный НЦ РАН, Ростов-на-Дону, Россия

<sup>4</sup> Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, Россия

<sup>5</sup> Институт прикладной физики РАН, Нижний Новгород, Россия

<sup>6</sup> НИУ Высшая школа экономики, Москва, Россия

<sup>7</sup> Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН, Москва, Россия

E-mail: tarasov@hitech.cplire.ru

Поступила в Редакцию 29 апреля 2022 г.

В окончательной редакции 29 апреля 2022 г.

Принята к публикации 12 мая 2022 г.

Описаны особенности проводимости в изготовленных различными методами пленках алюминия в зависимости от наличия примесей, толщины пленки, условий нанесения. Приведены результаты измерения методами рентгеновской дифракции и атомно-силовой микроскопии свойств поверхности и кристаллической структуры изготовленных пленок алюминия, оксида и нитрида алюминия. Изготовлены СИС-, СИН-, НИН-переходы на основе алюминия с использованием как теневого напыления, так и магнетронного распыления. Измерены вольтамперные характеристики. Обсуждаются перспективы улучшения характеристик алюминиевых СИС-переходов, СКВИД-усилителей и СИНИС-детекторов, работающих при температурах порядка 100 мК.

**Ключевые слова:** пленки алюминия, шероховатость пленок, атомарно гладкие пленки, туннельные переходы.

DOI: 10.21883/FTT.2022.10.53075.35NN

### 1. Введение

Интерес к квантовым компьютерам, кубитам, болометрам и усилителям с квантовой чувствительностью, приводит к смещению приоритетов современной сверхпроводниковой электроники от высокотемпературной сверхпроводимости к низкотемпературной. Здесь важную роль играет сверхпроводящий алюминий, сверхпроводящие линии передачи, резонаторы и туннельные переходы на его основе. В отличие от ниобия, для алюминия наличие примесей и уменьшение толщины пленки может приводить не только к уменьшению критического тока и критической температуры наноразмерных объектов (пленок и нанопроводов), но и к увеличению. Алюминий является классическим сверхпроводником первого рода. Легирование примесями и/или уменьшение размеров образца может привести к тому, что такой объект станет сверхпроводником второго рода. Появление абрикосовских вихрей существенно изменяет характеристики как линий передачи, так и активных

элементов типа СИС-, СИН- и НИН-переходов. Для туннельных переходов, помимо квазичастичного тока, необходимо учитывать также андреевский ток и токи утечки через вихревые структуры, влияние магнитного поля и перегрев транспортным током.

Применяемые на практике пленки алюминия имеют, как правило аморфную или мелкокристаллическую структуру. У таких пленок удельная проводимость оказывается меньше, чем у пленок, имеющих кристаллическую структуру, или у массивных образцов. Это связано с уменьшением концентрации свободных электронов, длины свободного пробега, увеличением числа дефектов и границ между кристаллитами. Удельная проводимость является ключевым параметром, определяющим потери в микроволновых структурах.

### 2. Пленки и туннельные переходы

Напыление пленок алюминия производилось методами термического испарения из нагрываемой током

лодочки, электронно-лучевого испарения из тигля и магнетронного распыления. В качестве примера можно привести идентичные по размерам образцы для измерения удельного сопротивления в виде полосок шириной 0.2 и длиной 10 mm. При толщине пленок 2 nm и меньше образцы демонстрировали исключительно высокое электрическое сопротивление, т.е. пленка, по всей видимости, была островковой: состояла из слабосвязанных участков. При толщине 6 nm удельное сопротивление составило  $\rho = 2 \cdot 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$ . Для пленок толщиной 20 nm  $\rho = 2.9 \cdot 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$ . Сопротивление пленок толщиной более 300 nm приближалось к табличному значению для массивного алюминия  $\rho = 2.6 \cdot 10^{-8} \Omega \cdot \text{m}$ . При малых толщинах пленка состоит из проводящих островков, разделенных слабо проводящими промежутками, а при увеличении толщины проводящие области сливаются. Малая проводимость аморфных тонких пленок может быть обусловлена локализацией носителей зарядов на слабосвязанных кластерах и рассеянием электронов на дефектах.

Образцы пленок алюминия различной толщины и состава примеси были исследованы методами атомно-силовой микроскопии и рентгеновской дифрактометрии. Типичное АСМ-изображение одной из алюминиевых пленок приведено на рис. 1. Топографическое изображение поверхности характеризуется шероховатым рельефом и соответствует кластерной структуре с размерами кластеров, коррелирующими с толщиной пленки. Зачастую на поверхности пленок наблюдаются макроостровки в виде капель размером до нескольких микрон. При увеличении толщины пленки до 30 nm размер кластеров увеличивается почти линейно, а латеральный размер превышает толщину пленки в полтора-два раза. При толщине больше 50 и выше 100 nm рост кластеров практически прекращается.

Для туннельных переходов важное значение имеет высота профиля шероховатости поверхности от пика до впадины (peak-to-peak)  $R_{pp}$ , которое изменяется от 2 до 10 nm при толщине пленок от 3 до 130 nm при термическом напылении [1]. Магнетронное напыление позволяет получить более гладкие пленки с  $R_{pp} = 5 \text{ nm}$  для пленки 150 nm [2]. Проводимость и СВЧ-свойства зависят от латерального размера кристаллитов, которые сравнимы с толщиной пленки при термическом напылении и до 3 раз в плане больше при магнетронном. Температура сверхпроводящего перехода пленок толщиной 18 nm и 3 nm составила 1.5 и 2.4 K. При напылении алюминия при трех значениях давления кислорода  $(0-0.3-1) \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$  критическая температура изменялась как 1.2–2.4–0 K и сопротивление на квадрат пленки 20 nm как 1.6  $\Omega$ –56  $\Omega$ –150 k $\Omega$ . С увеличением давления кислорода наблюдается возрастание сопротивления пленки с одновременным ростом критической температуры до 2.4 K. Более высокое давление кислорода приводит к переходу пленок в состояние диэлектрика. В пленках, напыленных с кислородом, наблюдаются значительные искажения поверхности в виде провалов и дефектов, окруженных гребнями из алюминия. Эти

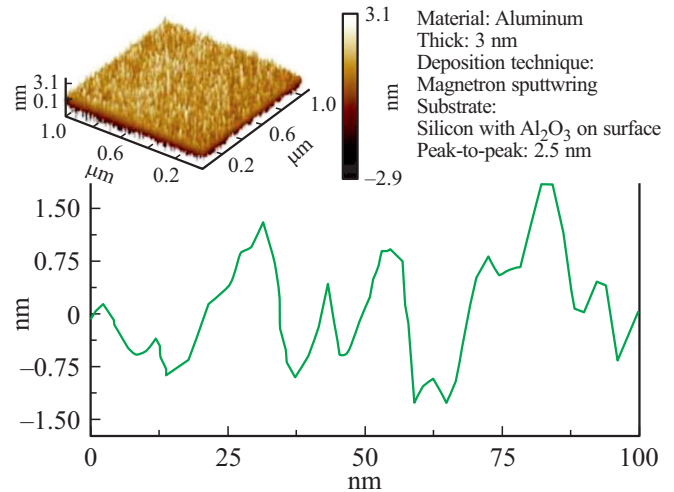
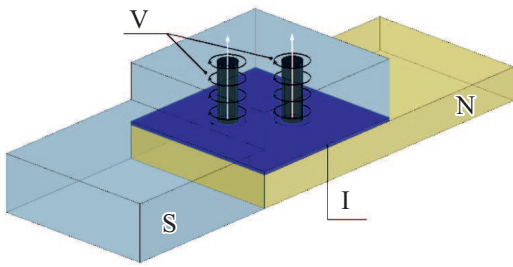


Рис. 1. АСМ-изображение пленки алюминия толщиной 3 nm.

особенности коррелируют с рентгенодифракционными параметрами пленок: фазового состояния, текстурированности кристаллической структуры и размера кристаллитов в пленке.

Кристаллы алюминия (кубический,  $Fm\bar{3}m$ ) и его оксида (тригональный,  $R\bar{3}c$ ) принадлежат к разным сингониям и имеют значительно отличающиеся параметры структуры:  $a = b = c = 0.405 \text{ nm}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$  и  $a = b = c = 0.518 \text{ nm}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 29^\circ$ , соответственно. Магнетронные пленки оксида алюминия находятся в рентгеноаморфной фазе, поэтому при напылении пленок алюминия на его оксид растущие кристаллиты преимущественно имеют произвольную ориентацию. Для выяснения механизмов проводимости пленок мы исследовали зависимости от магнитного поля вольтамперных характеристик СИН-переходов на их основе [3]. Чистый кристаллический алюминий является сверхпроводником первого рода с критической температурой 1.2 K, критическим полем 11 mT, длиной когерентности 1.5  $\mu\text{m}$  и лондонской глубиной проникновения магнитного поля 15–50 nm. Зернистая структура и загрязнения приводят в наших образцах к росту критической температуры до 2.4 K и критического поля до 30 mT. Пленки начинают проявлять свойства сверхпроводника второго рода с высоким верхним критическим полем 28 mT, длиной когерентности 110 nm, глубиной проникновения 300 nm. Уже в поле 4.6 mT проводимость СИН-перехода при нулевом смещении по току становится на три порядка выше, чем без поля. В сверхпроводнике второго рода в магнитном поле выше первого критического в пленку проникают абрикосовские вихри. Для длины когерентности 110 nm площадь вихря составит 0.04  $\mu\text{m}^2$ .

Проводимость в нуле смещения по току при этом возрастает на два порядка. Схематическое изображение СИН-перехода с двумя абрикосовскими вихрями приведено на рис. 2. Для изготовления туннельных переходов верхний слой алюминия окисляли в атмосфере кислорода до получения удельного сопротивления порядка 1 k $\Omega$  на 1  $\mu\text{m}^2$ . Свойства барьера, его



**Рис. 2.** Схематическое изображение СИН-перехода  $1 \times 1$  мкм с двумя вихрями диаметром  $0.2 \mu\text{m}$ , где  $S$  — сверхпроводящая пленка алюминия,  $I$  — изолятор,  $N$  — нормальный металл,  $V$  — вихри.

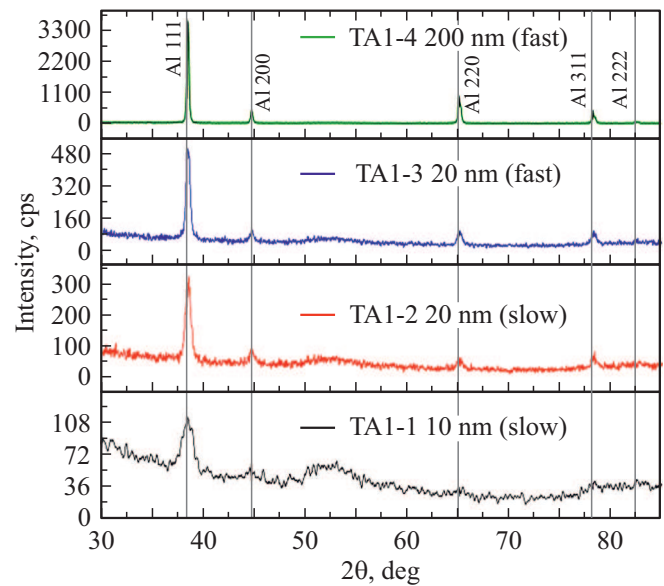
прозрачность, сопротивление, плотность тока должны зависеть от качества поверхности диэлектрика. В случае атомарно гладкой пленки можно ожидать увеличение плотности тока, уменьшение сопротивления переходов и уменьшение паразитных утечек, связанных с микроразрывами. Исследовано влияние величины магнитного поля на проводимость переходов с пленками различной толщины.

Результаты работы показывают, что оптимальными для предотвращения появления вихрей в СИС- и СИН-переходах являются пленки алюминия толще  $300 \text{ nm}$ , напыленные магнетроном. Дальнейшего улучшения характеристик можно добиться при использовании гетероэпитаксиальных пленок алюминия,  $\text{AlN}$  и  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , выращенных на нагретой сапфировой подложке [4]. Для улучшения электрических, тепловых и микроволновых свойств структур на основе алюминиевых пленок проводится цикл исследований технологии нанесения алюминиевой пленки первого слоя, включающий длительный отжиг кремниевых (111) подложек в вакууме, нанесении без нарушения вакуума тонкого  $5\text{--}8 \text{ nm}$  затравочного слоя при температуре  $400^\circ\text{C}$ , охлаждении до комнатной температуры (и ниже), нанесении сплошной монокристаллической пленки толщиной более  $300 \text{ nm}$ . Для формирования туннельного барьера производится окисление или нитридизация атомногладкой поверхности алюминия. Кристаллографическая ориентация пленок алюминия приведена на рис. 3. Затем напыляется второй слой алюминия толщиной более  $300 \text{ nm}$ . Для формирования области туннельных переходов выполняется первая электронная литография с последующим травлением сначала второго слоя алюминия, а потом производится травление первого слоя алюминия по второй электронной литографии.

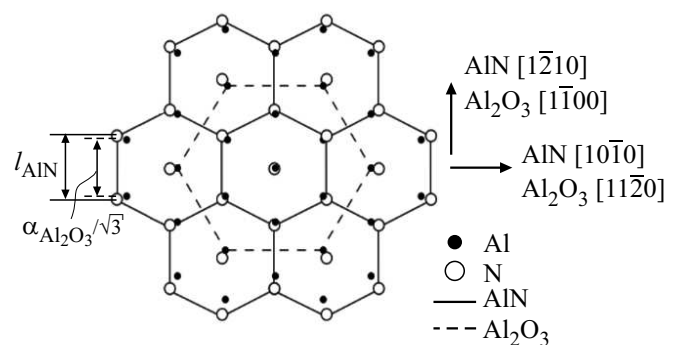
Детальная структура интерфейса  $\text{Al}/\text{Al}_2\text{O}_3$  остается слабо исследованной. Для формирования туннельных переходов важно выяснить структуру туннельного барьера, что было задачей отдельного исследования. Получение тонких пленок  $\text{AlN}$  на  $\text{Al}_2\text{O}_3$  с ориентацией (0001) осуществлялось с применением установки ионно-лучевого осаждения, включающей в себя ионный источник КЛАН-53, ростовую камеру и вакуумную систему.

Остаточное давление газов в ростовой камере составляло  $10^{-4} \text{ Pa}$ . Ионно-лучевое осаждение проводилось из алюминиевой мишени с чистотой  $99.99\%$  в атмосфере азотно-аргоновой смеси с чистотой используемых газов  $99.999\%$ . Объемная доля азота в азотно-аргоновой смеси составляла  $75\%$ . Энергия ионного пучка составляла  $600 \text{ eV}$  при значении ионного тока  $40 \text{ mA}$ . Время осаждения составляло  $60 \text{ min}$  при температуре подложки  $800^\circ\text{C}$ . Отжиг полученных образцов осуществлялся в атмосфере азота при давлении  $100 \text{ Pa}$ , а также на воздухе в температурном диапазоне  $800\text{--}950^\circ\text{C}$  в течение  $120 \text{ min}$ . Отметим, что параметры решетки таких барьеров заметно отличаются от табличных, для  $\text{AlN}$  это  $0.31 \text{ nm}$ , а для  $\text{Al}_2\text{O}_3$  это  $0.47 \text{ nm}$ . В качестве примера на рис. 4 приведены схемы роста пленок на сапфировой подложке.

Из этого рисунка видно, что при правильном подборе материала и ориентации подложки и условий осаждения можно получить гладкую бездефектную поверхность барьера.



**Рис. 3.** Структура пленок алюминия толщиной  $200, 20, 10 \text{ nm}$  при быстром и медленном магнетронном напылении.



**Рис. 4.** Схема ориентации роста пленок  $\text{AlN}$  на  $c$ -плоскости саффира из [5].

### 3. Дискуссия

Нужно отметить, что изготовление по сходной технологии атомарно гладких серебряных пленок в [6] с рекордно малой среднеквадратичной шероховатостью  $RMS=90$  pm указывает на перспективность как для научных исследований, так и для развития промышленной технологии согласно патенту [7].

Субнанометровая среднегеометрическая шероховатость должна позволить повысить плотность сверхпроводящего критического тока, снизить диэлектрические потери и флуктуации за счет двухуровневых туннельных систем. В квантовых технологиях такие свойства имеют решающее значение, поскольку добротность и когерентность определяются свойствами сверхпроводниковых туннельных переходов. Еще одним важным свойством гладких пленок барьера является высокая эффективная площадь туннелирования. Как мы отмечали в [2], для шероховатых пленок площадь туннельного перехода может составлять 10–20% от площади сэндвича. Если разделить величину кванта сопротивления на сопротивление перехода, то можно получить количество параллельных каналов проводимости. Считая диаметр такого канала равным длине когерентности, можем оценить эффективную площадь туннелирования. Для наших переходов площадью  $1 \mu m^2$  эффективная площадь туннелирования может составлять 0.1, что сравнимо с 0.13 в [8]. При этом участки с малым туннельным током вносят в емкость перехода практически такой же вклад, как области туннелирования. Это объясняется тем, что туннельный ток зависит экспоненциально от толщины барьера, тогда как емкость зависит линейно. В результате в случае атомарно гладкого барьера эффективная площадь туннелирования может приближаться к геометрической площади. Это означает снижение удельной емкости переходов почти на порядок. В случае реализации таких переходов возможно существенное улучшение электродинамических характеристик и расширение спектральной полосы согласования.

С другой стороны, даже если предположить, что плотность туннельного тока одинакова по всей площади, то сама площадь шероховатой поверхности может быть в 1.5–2 раза больше чем у гладкой, т.е. для гладкой поверхности площадь такого же по сопротивлению и току перехода может быть больше, что упрощает требования к размерам переходов.

### Финансирование работы

Работа по экспериментальному исследованию образцов выполнена в ИРЭ РАН при финансовой поддержке РФФИ № 21-42-04421. Для изготовления образцов было использовано оборудование УНУ #352529 „Криоинтеграл“, развитие которого поддержано грантом МНВО РФ, соглашение № 075-15-2021-667. Рентгенодифракционные эксперименты были выполнены в НИТУ „МИСиС“ на кафедре Физического материаловедения на

оборудовании Центра рентгеноструктурных исследований и диагностики материалов. Работа А.А. Гунбиной по разработке топологии образцов выполнена в ИПФ РАН при поддержке ГЗ ИПФ РАН № 0030-2021-0005.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] M.A. Tarasov, L.S. Kuzmin, N.S. Kaurova. *Instrum. Exp. Tech.* **52**, 877 (2009).
- [2] M. Tarasov, A. Gunbina, M. Fominsky, A. Chekushkin, V. Vdovin, V. Koshelets, E. Sohina, A. Kalaboukhov, V. Edelman. *Electronics* **10**, 2894 (2021).
- [3] M. Tarasov, V. Edelman. *JETP Lett.* **101**, 740 (2015).
- [4] D.L. Medlin, K.F. McCarty, R.Q. Hwang. *Thin Solid Films* **299**, 110 (1997).
- [5] М.Г. Амбарцумов. Канд. дис. Влияние условий плазмоактивированного атомнослоевого осаждения на микроструктуру, состав и свойства пленок нитрида алюминия. (2020).
- [6] I.A. Rodionov, A.S. Baburin, A.R. Gabidullin, S.S. Maklakov, S. Peters, I.A. Ryzhikov, A.A. Andriyash. *Sci. Rep.* **9**, 12232 (2019).
- [7] I.A. Rodionov, A.S. Baburin, I.A. Ryzhikov. Single-crystalline metal films. Patent US 2021/00/0071292 A1/
- [8] T. Greibe, M. Stenberg, C. Wilson, T. Bauch, V. Shumeiko, P. Delsing. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 097001 (2011).

*Редактор К.В. Емцев*