

原子層成長法を用いたアルミニウム薄膜の特異な特性

Peculiar properties of Al thin films grown by atomic layer deposition

NTT 物性基礎研¹, 東京理科大² °原田 裕一¹, 鈴木 元^{1,2}, 山口 浩司¹NTT BRL¹, Tokyo Univ. of Science², °Yuichi Harada¹, Hajime Suzuki^{1,2}, Hiroshi Yamaguchi¹

E-mail: harada.yuichi@lab.ntt.co.jp

原子層成長法を用いたアルミニウム薄膜の超伝導性について以前報告を行ったが[1]、今回は、その詳しい電気伝導特性について薄膜成長機構と併せて考察を行なう。

Nb 薄膜では不純物の混入は超伝導臨界温度(T_C)の低下につながるが、Al 薄膜では不純物の混入や薄膜化による格子の歪みは T_C の上昇につながる事が良く知られている[2]。

しかしながら、ジメチルエチルアミンアラン(DMEAA)を原料として原子層成長(ALD)法で作製した Al 薄膜の T_C は、バルクの $T_C = 1.2\text{ K}$ よりも大きい値は観測出来ず、厚さ 100 nm 以下の薄膜では逆に T_C の低下が起こる。 T_C は Al 薄膜の粒径と密接な関係があり、粒径が 100 nm 以上の薄膜ではバルクの T_C が得られるが、粒径が 20~30 nm 程度では、測定を行った 300 mK 迄では超伝導性を示さないこともある。また、 T_C 近傍の温度において超伝導転移前に抵抗値の上昇によるピークが現れることもある。更に、薄膜の残留抵抗比($RRR=R(300\text{ K})/R(4\text{ K})$)を調べると、一般的な傾向と異なり RRR の小さい Al 薄膜の方が高い T_C を示す傾向があることが分かった。

このようなことから、DMEAA を用いた ALD 法成長の Al 薄膜では、粒径と粒径が超伝導特性に影響を与えると考えられる。

化学気相成長(CVD)法による Al 薄膜成長機構は、DMEAA のアミン基から熱分解によりアラン(AlH_3)が外れ、基板表面にはアラン

から水素が脱離した Al のみが成長すると考えられてきた[3]。

しかしながら、CVD 法と異なり ALD 法では Al だけではなく AlH_3 も存在する形で薄膜成長が起こっていると仮定すると、特異な成長条件は説明出来る。アランは絶縁体であり、粒界にアランが存在すると考えると粒径が小さい場合には、Al に対して AlH_3 の割合が大きくなり薄膜の超伝導特性は、粒界抵抗に大きく依存し、抵抗値が大きい時には、超伝導波動関数のゆらぎが大きくなることで超伝導転移温度は下がる。また粒界の存在により電流経路が 1 次元的になると T_C 近傍では SN 界面の状態に依存し抵抗ピークが出現すると考えられる[4]。

実際に ALD 法と電子線蒸着法で作製した Al 薄膜の組成を XPS にて分析を行った結果、ALD 法で作製した薄膜は、電子線蒸着法で作製した薄膜と比較して基板近傍で水素濃度が高い。また ALD 法作製 Al 薄膜の中で超伝導性が悪い試料では水素が膜中に広く分布していることが判明した。

[1] 鈴木元, 他, 応物 2012 春 16a-B7-6.

[2] Hauser, Phys. Rev. B3 (1961) 1611.

[3] Karpov, *et al.*, J. Appl. Phys. 76 (1994) 3471.

[4] Santhanam, *et al.*, PRL 66 (1991) 2254.