

02,11

Верхнее критическое поле тонких пленок нитрида ниобия

© М.А. Васютин, Н.Д. Кузьмичев, Д.А. Шилкин

Мордовский государственный университет им. Н.П. Огарева,
Саранск, Россия

E-mail: vasyutinm@mail.ru

(Поступила в Редакцию 8 июля 2015 г.)

Исследованы температурные зависимости перехода в сверхпроводящее состояние тонких пленок нитрида ниобия (NbN) по первой гармонике напряжения в постоянных магнитных полях до 8 Т. Определена зависимость второго критического поля NbN от температуры. В рамках теории WHN (Werthamer, Helfand, Hohenberg) найден параметр, учитывающий влияние спинового парамагнетизма в данном материале, и определена зависимость верхнего критического поля от температуры, хорошо описывающая экспериментальные данные. Из транспортных и оптических измерений оценены важнейшие параметры сверхпроводника.

1. Введение

Интерес к нитриду ниобия, несколько снизившийся после открытия высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), сейчас опять возрос в связи с возможностью его использования в качестве болометра, позволяющего детектировать отдельные фотоны (см., например, работу [1] и ссылки в ней), радиочастотного резонатора [2] и материала для сверхпроводящих магнитов [3]. Простота изготовления, химическая и радиационная устойчивость, механическая прочность и высокое второе критическое поле при нулевой температуре ($H_{c2}(0) > 20$ Т для пленок с $T_c > 15$ К) [4,5] делают этот материал весьма привлекательным для практических целей.

Фундаментальная направленность исследования нитрида ниобия также актуальна, например, в связи с изучением перехода сверхпроводник-изолятор в ультратонких пленках NbN [6], где получены результаты, проясняющие картину перехода Березинского–Костерлица–Таулеса (БКТ) в ВТСП. Оказалось, что вблизи квантовой критической точки энергия вихревого кора связана с энергетической щелью, а не со сверхтекучей плотностью. Усложнение БКТ-физики в купратных ВТСП (в частности, в $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO)) связано с малой длиной когерентности, что затрудняет наблюдение БКТ-перехода, происходящего в отдельных CuO_2 -слоях несогласованно. В нитриде ниобия концентрация электронов проводимости мала [7] как и концентрация носителей в YBCO. Длина когерентности и глубина проникновения магнитного поля в NbN также близки к их значениям в YBCO (для NbN — $\xi = 5$ nm, $\lambda = 200$ nm [8]; для YBCO — $\xi_{ab} = 3.1$ nm, $\lambda_c = 180$ nm [9]). Поэтому изучение пленок NbN может помочь в понимании механизма разрушения сверхпроводимости током, магнитным полем и тепловыми вихрями вблизи температуры перехода в сверхпроводящее состояние (T_c) в YBCO [10–13].

Большой интерес вызывает и обнаруженный недавно в нитриде ниобия обратный спиновый эффект Холла [14], наблюдавшийся при $T < T_c$. Это явление важно как для понимания физики сверхпроводимости в NbN, так и для перспектив его использования в спинтронике.

Пленки, изучаемые в данной статье, довольно сильно отличаются от исследованных ранее прежде всего сочетанием высокой температуры перехода и высоким удельным сопротивлением в нормальном состоянии ρ_n . Как известно, увеличение удельного сопротивления приводит к уменьшению T_c [15]. Но это не свойственно s -волновым сверхпроводникам. Сопротивление должно расти с ростом беспорядка, но величина T_c подавляется в этом случае не только беспорядком, но зависит и от плотности состояний на уровне Ферми.

Исследование температурной зависимости второго критического поля данных образцов $H_{c2}(T)$ предоставляет возможность, кроме определения одного из наиболее практически значимых параметров $H_{c2}(0)$, определить степень влияния спинового парамагнетизма Паули на сверхпроводящее состояние и оценить (с привлечением оптических измерений и эффекта Холла) время релаксации, скорость Ферми, длину свободного пробега, длину когерентности Гинзбурга–Ландау, плотность состояний на уровне Ферми.

2. Теория

Как известно, на величину второго критического поля влияют спиновый парамагнетизм Паули и спин-орбитальное взаимодействие электронов. Спиновый парамагнетизм снижает поле $H_{c2}(0)$, в то время как спин-орбитальное взаимодействие препятствует его уменьшению. В теории WHN (Werthamer, Helfand, Hohenberg) [16] учитываются спиновые эффекты при решении уравнений Горькова для верхнего критического магнитного поля массивного сверхпроводника 2-го рода.

В модели ВНН в неявном виде было получено уравнение, связывающее температуру T и второе критическое поле H_{c2} сверхпроводника (размерности сохранены):

$$\ln\left(\frac{1}{t}\right) = \sum_{v=-\infty}^{\infty} \left\{ \frac{1}{|2v+1|} - \left[|2v+1| + \frac{h}{t} + \frac{(\alpha h/t)^2}{|2v+1| + (h + \lambda_{so}/t)} \right]^{-1} \right\}, \quad (1)$$

где $h = 2eH(v_F^2\tau)/(6\pi T_c)$ — безразмерный параметр, пропорциональный напряженности магнитного поля H (т.е. поля H_{c2}), e — заряд электрона, v_F — скорость Ферми, τ — время релаксации, $\alpha = 3/(2mv_F^2\tau)$ — параметр, учитывающий спиновый парамагнетизм Паули (идентичен параметру Маки [17]), m — масса свободного электрона, $\lambda_{so} = 1/(3\pi T_c\tau_2)$ — параметр спин-орбитального рассеяния, τ_2 — время релаксации при спин-орбитальном рассеянии. Здесь время τ и τ_2 выражены в обратных энергетических единицах.

Решая уравнение (1), можно определить зависимость второго критического поля от температуры при разных значениях параметров α и λ_{so} .

3. Эксперимент и обработка результатов

В данной работе изучались пленки NbN толщиной $d = 400$ nm, напыленные на подложку из полированного плавленого кварца методом реактивного катодного распыления [18]. Структура пленок — столбчатая. Характерный размер столбчатых гранул — 100 nm. Формирование столбиков происходило, в основном, перпендикулярно плоскости подложки. Постоянная решетки $a = 4.39$ Å. Длина образцов пленок — 9.0 mm. Ширина — 4.5 mm. Исследования проводились стандартным четырехконтактным методом при амплитуде переменного тока 0.21 mA на частоте 1 kHz. T_c образцов менялась в пределах 16.2–16.5 K. Ширина перехода ~ 0.1 K. Удельное сопротивление в нормальном состоянии вблизи перехода $\sim 1000 \mu\Omega \cdot \text{cm}$. Отношение сопротивления образцов при комнатной температуре к сопротивлению в нормальном состоянии при температуре, близкой к T_c , $R_{295}/R_{18} \approx 0.93$. Для экспериментов использовалась безжидкостная криомагнитная система 8T CryoFree-404, позволяющая охлаждать образцы до 6 K в постоянном магнитном поле с индукцией до 8 T. Температурные измерения проводились с помощью контроллера LakeShore 335. Датчик температуры — Cernox CX-1050. Погрешность при измерении температуры не превышала 0.01 K.

На рис. 1 изображены температурные зависимости первой гармоники напряжения сигнала отклика в области перехода в постоянных магнитных полях от 0 до 8 T для образца с $T_c = 16.48$ K. Видно, что смещение первой гармоники при увеличении поля происходит целиком с незначительным увеличением ее ширины.

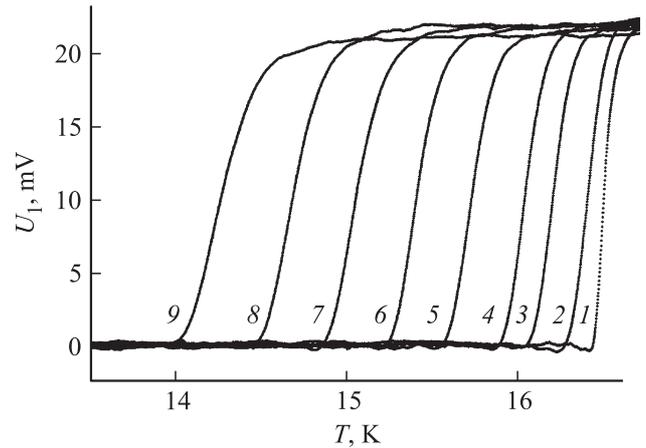


Рис. 1. Температурная зависимость первой гармоники напряжения для постоянного магнитного поля индукцией от 0 до 8 T. Цифрами обозначены кривые перехода в разных магнитных полях: 1 — $\mu_0 H = 0$, 2 — $\mu_0 H = 1$ T, 3 — $\mu_0 H = 2$ T, 4 — $\mu_0 H = 3$ T, 5 — $\mu_0 H = 4$ T, 6 — $\mu_0 H = 5$ T, 7 — $\mu_0 H = 6$ T, 8 — $\mu_0 H = 7$ T, 9 — $\mu_0 H = 8$ T.

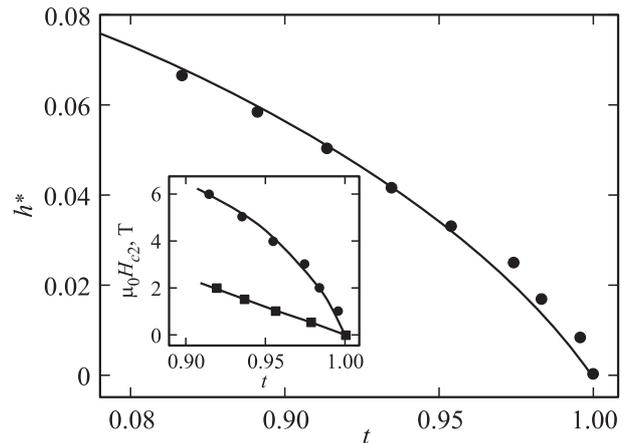


Рис. 2. Зависимость приведенного второго критического магнитного поля от приведенной температуры (круги — эксперимент, сплошная линия — теория ВНН). На вставке приведена температурная зависимость второго критического магнитного поля (точки), аппроксимированная полиномом третьей степени (сплошная линия), и (для сравнения) температурная зависимость второго критического магнитного поля (квадратики), взятая из работы [19].

На рис. 2 показана температурная зависимость экспериментального и теоретического приведенного второго критического поля h^* , определенная по данным рис. 1. Экспериментальные значения h^* находились по формуле [16]: $h^* = H_{c2}/(-dH_{c2}/dt)_{t=1}$, где $t = T/T_c$ — приведенная температура, $(dH_{c2}/dt)_{t=1}$ — производная H_{c2} по t при $T = T_c$. Для нахождения производной в точке $t = 1$ экспериментальная температурная зависимость $H_{c2}(t)$ аппроксимировалась полиномом третьей степени методом наименьших квадратов (вставка на рис. 2). Полученное значение $((-dH_{c2}/dt)_{t=1} = 120$ T,

$(-dH_{c2}/dT)_{T=T_c} = 7.28 \text{ Т/К}$) является очень высоким (в работе [19], например, $(-dH_{c2}/dT)_{T=1} \sim 21.6 \text{ Т}$). Такое отличие может быть связано с разной толщиной и структурой пленок. Температура перехода находилась по середине скачка (10–90% от величины напряжения в нормальном состоянии вблизи перехода).

Теоретические значения h^* находились по формуле [16]: $h^* \equiv h/(-dh/dt)_{t=1} = (\pi^2/4)h$. Зависимость $h(t)$ определялась численным решением уравнения (1). Наилучшее согласие экспериментальной и теоретической зависимостей $h^*(T)$ достигается при значении параметров: $\alpha = 6.00$, $\lambda_{so} = 0$ (рис. 2). При этом верхнее критическое магнитное поле $H_{c2}(0) = 13.7 \text{ Т}$.

4. Обсуждение

Параметр α можно оценить, по крайней мере, двумя разными методами [см., например, (20)]: по величине удельного сопротивления в нормальном состоянии ρ_n и по значению производной $(dH_{c2}/dT)_{T=T_c}$.

В первом случае:

$$\alpha = 2.35\rho_n\gamma, \quad (2)$$

где γ — коэффициент электронной теплоемкости. Используя значения размеров исследуемого образца, сопротивления на постоянном токе $R = 12 \Omega$, величину $\gamma = 2.1 \cdot 10^3 \text{ erg}/(\text{cm}^3 \cdot \text{K}^2)$ [21,22] и полагая расстояние между потенциальными контактами $b = 0.2 \pm 0.05 \text{ см}$, получим значения $\rho_n = 1080 \pm 270 \mu\Omega \cdot \text{см}$ и соответственно $\alpha = 5.3 \pm 1.3$. Полученное α близко к экспериментальному ($\alpha = 6.00$).

Во втором случае:

$$\alpha = 5.322 \cdot 10^{-5} (-dH_{c2}/dT)_{T=T_c}. \quad (3)$$

Подставляя значение экспериментальной производной нашего образца ($7.28 \cdot 10^4 \text{ Ое/К}$), получим $\alpha \approx 3.9$. Заниженное значение полученной величины α обусловлено ее „усреднением“ по всем экспериментальным точкам при подгонке полиномом третьей степени (вставка на рис. 2) производной $(-dH_{c2}/dT)_{T=T_c}$, входящей в (3). При приближении к T_c значение производной увеличивается в 1.5–2 раза. Корректное определение значения $(-dH_{c2}/dT)_{T=T_c}$ из экспериментальных данных затруднительно.

Кроме этого, параметр спинового парамагнетизма α (и другие параметры сверхпроводящего состояния) может быть найден из оптических исследований [7,23]. Используя значения плазменной частоты ω_p и частоты релаксации ν , полученные на подобных образцах, в работе [7], получим удельное сопротивление (в системе СИ): $\rho_n = 1/(\omega_p^2 \tau \epsilon_0)$, где $\epsilon_0 = 8.85 \cdot 10^{-12} \text{ Ф/м}$ — электрическая постоянная. Принимая $\omega_p^2 = 0.72 \cdot 10^{30} \text{ с}^{-2}$ и $\tau = 12.95 \cdot 10^{-15} \text{ с}$, получим $\rho_n = 1200 \pm 75 \mu\Omega \cdot \text{см}$. Подставляя это значение в формулу (2), определяем $\alpha = 5.9 \pm 0.4$. Это значение практически совпадает с экспериментальным.

Оценка верхнего критического поля также может быть сделана двумя способами. Без учета спинового парамагнетизма ($\alpha = 0$): 1) $H_{c2}^*(0) \approx 0.69(dH_{c2}/dt)_{t=1}$ и 2) $H_{c2}^*(0) \approx 3.1\rho_n\gamma T_c$. Для ненулевого значения параметра Маки: $H_{c2}(0) = H_{c2}^*(0)(1 + \alpha^2)^{-1/2}$. При этом в первом случае ($\alpha = 6$) $\mu_0 H_{c2}(0) = 13.6 \pm 1 \text{ Т}$, во втором — $\mu_0 H_{c2}(0) = 19 \pm 5 \text{ Т}$, что в пределах ошибок согласуется с теорией WHN.

В работе [19] пленки NbN демонстрируют отсутствие спинового парамагнетизма Паули ($\alpha = 0$), что должно приводить к значительному увеличению верхнего критического поля. Тем не менее, полученное авторами значение $H_{c2}(0) = 14.6 \text{ Т}$ на подобном образце близко к оценкам $H_{c2}(0)$ наших образцов, что связано с небольшим значением наклона $H_{c2}(T)_{T=T_c}$ (вставка на рис. 2). Невысокое значение $(dH_{c2}/dT)_{T=1}$ связано с высокой концентрацией электронов проводимости, обуславливающей, по-видимому, сильное электрон-электронное отталкивание.

Оценивая параметр Иоффе–Регеля [24] через значение α ($k_{Fl} = 3\pi/\alpha$), полученное в нашей работе, приходим к $k_{Fl} = 1.57$, что соответствует „грязному“ пределу.

Длина когерентности Гинзбурга–Ландау, оцененная по формуле $\xi_{GL}(0) = [\Phi_0/(2\pi H_{c2}(0))]^{1/2}$ при значении $H_{c2}(0)$, полученном в нашей работе, дает величину 49 \AA , что совпадает с литературными данными [8].

Плотность состояний на уровне Ферми, найденная по формуле [19]: $N(0) = \pi H_{c2}(0)/(0.69T_c \cdot 4ek_B\rho_n)$, имеет величину $\sim 5.7 \cdot 10^{27} \text{ states}/(\text{m}^3 \text{ eV})$.

Во многих работах [5,8,15,18] зависимость $H_{c2}(T)$ хорошо аппроксимируется линейной зависимостью от T_c до температур $0.6-0.7T_c$. При этом наклон приближающей прямой (производная H_{c2} по T) существенно (в несколько раз) меньше полученного в нашей работе. Влияние парамагнитного эффекта (подавление H_{c2} , выражающееся в загибе кривой) начинается в нашей работе уже в полях 3–4 Т, тогда как в упомянутых статьях парамагнитный эффект вообще не проявляется или проявляется в полях, больших 10 Т.

Причиной такой разницы свойств пленок одинакового состава является большая разница удельного сопротивления образцов NbN. В свою очередь, большое удельное сопротивление наших образцов нитрида ниобия вызвано низкой концентрацией электронов проводимости.

Концентрацию электронов проводимости N_e в образцах, подобных нашим, можно получить из работы [25]. Приведенные в ней экспериментальные зависимости постоянной Холла от удельного сопротивления (для образца с параметром Иоффе–Регеля $k_{Fl} = 1.68$) позволяют определить значение N_e , соответствующее определенному ρ_n . Для удельного сопротивления $\rho_n = 1200 \mu\Omega \cdot \text{см}$ концентрация $N_e = 3.48 \cdot 10^{22} \text{ e}/\text{cm}^3$. Т.е. в 5–6 раз меньше, чем в образце с близким значением $T_c = 16.1 \text{ К}$ [19], и удельным сопротивлением, меньшим тоже в 5–6 раз. Параметр Маки для данного образца $\alpha \approx 5.6$.

Модуль волнового вектора Ферми можно найти из концентрации носителей: $k_F \approx 1.01 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-1}$. Тогда длина свободного пробега (с учетом значения параметра Иоффе–Регеля) $l \approx 1.66 \text{ \AA}$.

5. Заключение

Температурная зависимость второго критического поля тонких пленок NbN, исследованная в данной работе, определяется, в основном, эффектом спинового парамагнетизма Паули с параметром Маки $\alpha = 6.00$. Данный параметр, определенный из транспортных, магнитных и оптических измерений, имеет близкие значения, что подтверждает сильный спиновый парамагнетизм. Параметр Иоффе–Регеля изученных образцов соответствует „грязному“ пределу. Зависимость $H_{c2}(T)$ NbN находится в согласии с теорией WHH.

Список литературы

- [1] A. Kamlapure, M. Mondal, M. Chand, A. Mishra, J. Jesudasan, V. Bagwe, L. Benfatto, V. Tripathi, P. Raychaudhuri. *Appl. Phys. Lett.* **96**, 072 509 (2010).
- [2] W. Weingarten. *Part. Accel.* **53**, 199 (1996).
- [3] R.T. Kampwirth, D.W. Capone, K.E. Gray, A. Vicens. *Magnetics, IEEE Transact.* **21**, 2, 459 (1985).
- [4] J.R. Gavaler, M.A. Janocko, A. Patterson, C.K. Jones. *J. Appl. Phys.* **42**, 1, 54 (1971).
- [5] J. Jesudasan, M. Mondal, M. Chand, A. Kamlapure, S. Kumar, G. Saraswat, V.C. Bagwe, V. Tripathi, P. Raychaudhuri. *AIP Conf. Proc.* **1349**, 923 (2011).
- [6] J. Yong, T. R. Lemberger, L. Benfatto, K. Ilin, M. Siegel. *Phys. Rev. B* **87**, 184 505 (2013).
- [7] Н.Д. Кузьмичев, Г.П. Мотулевич. *ЖЭТФ* **84**, 6, 2316 (1983).
- [8] R. Jha, A. Kumar, V.P.S. Awana. *AIP Conf. Proc.* **1447**, 867 (2012).
- [9] Ю.М. Ципенюк. *Физические основы сверхпроводимости*. Изд-во МФТИ, М. (2003).
- [10] М.А. Васютин, А.И. Головашкин, Н.Д. Кузьмичев. *ФТТ* **48**, 12, 2128 (2006).
- [11] N.D. Kuzmichev, M.A. Vasyutin, A.I. Golovashkin. *Physica C* **460–462**, P. 2. 849 (2007).
- [12] М.А. Васютин, А.И. Головашкин, Н.Д. Кузьмичев. *КСФ* **9**, 48 (2008).
- [13] Д.А. Балаев, С.В. Семенов, М.И. Петров. *ФТТ* **55**, 12, 2305 (2013).
- [14] T. Wakamura, H. Akaike, Y. Omori, Y. Niimi, S. Takahashi, A. Fujimaki, S. Maekawa & Y. Otani. *Nature Mater.* **14**, 675 (2015).
- [15] Z. Wang, A. Kawakami, Y. Uzawa, B. Komiyama. *J. Appl. Phys.* **79**, 7837 (1996).
- [16] N.R. Werthamer, E. Helfand, P.C. Hohenberg. *Phys. Rev.* **147**, 1, 295 (1966).
- [17] K. Maki. *Physics* **1**, 127 (1964).
- [18] Е.А. Антонова, В.А. Сухов. *ФНТ* **7**, 8, 1002 (1981).
- [19] S.P. Chockalingam, M. Chand, J. Jesudasan, V. Tripathi, P. Raychaudhuri. *Phys. Rev. B* **77**, 214 503 (2008).
- [20] M. Ashkin, J.R. Gavaler. *J. Appl. Phys.* **49**, 4, 2449 (1978).
- [21] R.R. Hake. *Appl. Phys. Lett.* **10**, 6, 189 (1967).
- [22] T.H. Geballe, B.T. Matthias, J.P. Remeika, A.M. Clogston, V.B. Compton, J.P. Maita, H.J. Williams. *Physics* **2**, 293 (1966).
- [23] А.А. Волков, Б.П. Горшунов, Г.В. Козлов, И.В. Федоров, А.Д. Семенов. *ЖЭТФ* **104**, 1, 2546 (1993).
- [24] A.F. Ioffe, A.R. Regel. *Prog. Semicond.* **4**, 237 (1960).
- [25] M. Chand, A. Mishra, Y.M. Xiong, A. Kamlapure, S.P. Chockalingam, J. Jesudasan, V. Bagwe, M. Mondal, P.W. Adams, V. Tripathi, P. Raychaudhuri. *Phys. Rev. B* **80**, 134 514 (2009).