

02

## Квантовый размерный эффект в сверхпроводящих пленках алюминия

© К.Ю. Арутюнов<sup>1,2</sup>, Е.А. Седов<sup>1</sup>, И.А. Голоколенов<sup>1,2</sup>, В.В. Завьялов<sup>1,2</sup>, Г. Константиноидис<sup>3</sup>, А. Ставринуидис<sup>3</sup>, Г. Ставринуидис<sup>3</sup>, И. Василиадис<sup>4</sup>, Т. Кехагиас<sup>4</sup>, Г.П. Димитракопулос<sup>4</sup>, Ф. Комнину<sup>4</sup>, М.Д. Кроитору<sup>5,6</sup>, А.А. Шаненко<sup>6</sup>

<sup>1</sup> Национальный исследовательский университет „Высшая школа экономики“, Москва, Россия

<sup>2</sup> Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН, Москва, Россия

<sup>3</sup> Институт электронных структур и лазеров, Фонд исследований и технологии Греции (FORTH), Ираклион, Греция

<sup>4</sup> Департамент физики, Университет Аристотеля Салоники, Салоники, Греция

<sup>5</sup> Институт теоретической физики III, Университет Баройта, Баройт, Германия

<sup>6</sup> Департамент физики, Центр точных и естественных наук (CCEN), Федеральный университет Пернамбуко, Пернамбуко, Бразилия

E-mail: karutyunov@hse.ru

Поступила в Редакцию 15 апреля 2019 г.

В окончательной редакции 22 апреля 2019 г.

Принята к публикации 24 апреля 2019 г.

Экспериментально исследовались высококачественные пленки алюминия на подложках из GaAs. Был обнаружен заметный рост критической температуры сверхпроводящего перехода с уменьшением толщины пленки. Эффект интерпретируется как проявление квантового размерного эффекта, влияющего как на плотность состояний электронов, так и на электрон-фононное взаимодействие.

**Ключевые слова:** сверхпроводимость, критическая температура, тонкие пленки, квантовый размерный эффект.

DOI: 10.21883/FIT.2019.09.48098.28N

### 1. Введение

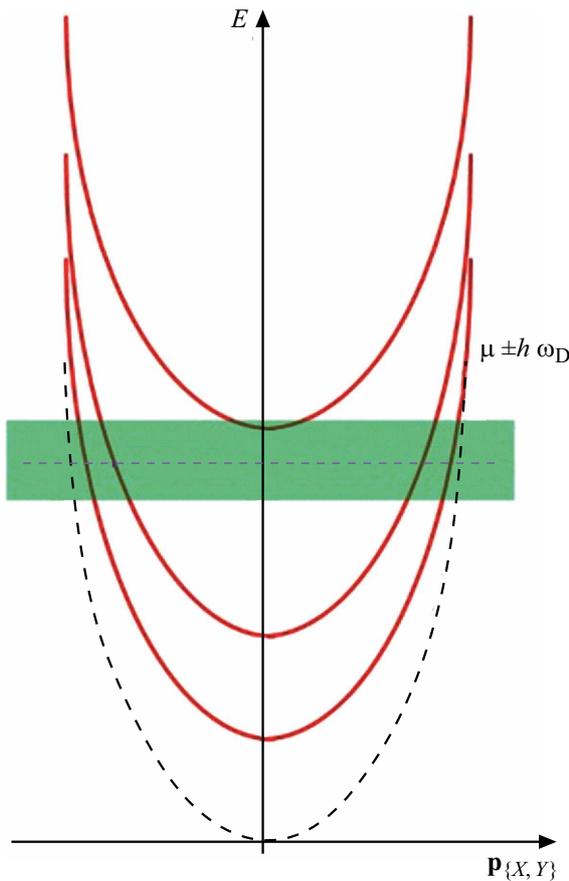
Уже в самых ранних работах по сверхпроводимости было обнаружено, что критическая температура сверхпроводящего перехода  $T_c$  тонких пленок может значительно отличаться от соответствующей величины для массивного образца [1]. Причем в ряде материалов с уменьшением толщины пленки наблюдается уменьшение  $T_c$  (например, в ниобии [2]), а в других — увеличение (например, в алюминии [3,4]). Несмотря на достаточно обширный экспериментальный материал и изобилие теоретических моделей, до настоящего времени в научном сообществе нет единого взгляда на природу этого явления. Одним из „объяснений“ является утверждение В.Л. Гинзбурга [5] о возможности формирования в реальных тонкопленочных образцах сложной системы слабосвязанных зерен, которая может привести к существенному отклонению  $T_c$  от значения, ожидаемого для монокристаллической квазидвумерной системы идентичной толщины. Целью настоящей работы было экспериментальное исследование температуры сверхпроводящего перехода в тонких высококачественных пленках алюминия.

### 2. Теория

Вклад эффекта размерного квантования на сверхпроводящие свойства может быть понят на качественном уровне очень просто. Рассмотрим простой металл с параболическим законом дисперсии  $E(\mathbf{p})$  (рис. 1, пунктирная кривая). Если один из размеров системы (например, в направлении  $Z$ ) настолько мал, что квантовым размерным эффектом (КРЭ) нельзя пренебречь, то для любого направления в плоскости пленки  $\{X, Y\}$  зависимость  $e(\mathbf{p}_{\{X,Y\}})$  вырождается в систему размерно-квантованных уровней  $E_n$  (рис. 1, сплошные кривые). Вхождение каждого такого уровня в энергетическое „окно“  $\mu \pm \hbar\omega_D$ , где  $\mu$  — химический потенциал, а  $\omega_D$  — дебаевская частота, соответствует условию резонанса, приводящего к сингулярности плотности состояний и, соответственно, возрастанию критической температуры  $T_c$ .

Для количественного анализа вклада квантового размерного эффекта на величину сверхпроводящего параметра порядка  $\Delta(r)$  может быть использован формализм уравнений Боголюбова–де Жена [6,7]:

$$\begin{pmatrix} H_e & \Delta(r) \\ \Delta^*(r) & -H_e^* \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_n(r) \\ v_n(r) \end{pmatrix} = E_n \begin{pmatrix} u_n(r) \\ v_n(r) \end{pmatrix}, \quad (1)$$



**Рис. 1.** Энергетический спектр металла с обычным параболическим законом дисперсии (пунктирная кривая) и в присутствии размерного квантования в направлении  $Z$ , перпендикулярном плоскости пленки  $\{X, Y\}$  (сплошные линии). Вхождение каждого  $n$ -го размерно-квантованного уровня энергии  $E_n$  в область  $\mu \pm \hbar\omega_D$  соответствует условию резонанса, приводящего к сингулярности плотности состояний и, соответственно, возрастанию критической температуры  $T_c$ .

где одноэлектронный гамильтониан в нулевом магнитном поле выглядит как

$$H_e = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + U(r) - \mu \tag{2}$$

потенциал взаимодействия определяется собственными значениями  $u_n(r)$  и  $v_n(r)$ , химическим потенциалом  $\mu$  и константой электрон-фононного взаимодействия  $g$ :

$$U(r) = g \sum_n \left\{ |u_n(r)|^2 f_n + |v_n(r)|^2 (1 - f_n) \right\}, \tag{3}$$

где  $f_n(E)$  — функция распределения Ферми–Дирака для  $n$ -го размерно-квантованного уровня энергии. Параметр порядка определяется как

$$\Delta(r) = g \sum_n \left\{ u_n(r) v_n^*(r) (1 - 2f_n) \right\}. \tag{4}$$

Суммирование производится по всем энергетическим уровням  $E_n > 0$  и с дополнительным условием

$|\xi_n| < \hbar\omega_D$ , где энергия отсчитывается от химического потенциала  $\mu$  и одноэлектронная энергия  $n$ -го уровня дается выражением

$$\xi_n = \int d^3r \left\{ u_n^*(r) \hat{H}_e u_n(r) + v_n^*(r) \hat{H}_e v_n(r) \right\}. \tag{5}$$

Плотность состояний  $N(0)$  и химический потенциал  $\mu$  находятся из условия нормировки, где  $n_e$  — концентрация электронов:

$$n_e = \frac{2}{V} \int d^3r \sum_n \left\{ |u_n(r)|^2 f_n + |v_n(r)|^2 (1 - f_n) \right\}. \tag{6}$$

Для тонкой пленки с размерами  $L_z \ll L_x, L_y$  граничные условия записываются как  $\Delta(r) = \Delta(z)$  и  $U(r) = U(z)$ , что приводит к специфической форме собственных функций

$$u_l(r) = \frac{e^{ik_x x}}{\sqrt{L_x}} \frac{e^{ik_y y}}{\sqrt{L_y}} \tilde{u}_l(z), \quad v_l(r) = \frac{e^{ik_x x}}{\sqrt{L_x}} \frac{e^{ik_y y}}{\sqrt{L_y}} \tilde{v}_l(z), \tag{7}$$

где совокупность квантовых номеров  $l = \{k_x, k_y, j\}$ , квантовое число  $j$  связано с квантованием спектра в направлении  $Z$ .

Учет граничных условий  $\tilde{u}_l(0) = \tilde{u}_l(L_z) = 0, \tilde{v}_l(0) = \tilde{v}_l(L_z) = 0$  позволяет представить собственные функции в виде разложения по гармоникам

$$\varphi_{l'} = \sqrt{\frac{2}{L_z}} \sin\left(\frac{\pi(l'+1)z}{L_z}\right), \quad l' = 0, 1, 2, \dots \tag{8}$$

Очевидно, что в тонких пленках электрон-фононное взаимодействие зависит от близости к границе. Было замечено [8], что отклонение константы электрон-фононного взаимодействия  $g$  от своего значения  $g_{bulk}$  пропорционально  $1/M$ , где  $M$  — количество атомных монослоев в тонкопленочном образце, т.к. именно  $1/M$ -я часть атомов находится у границы. В расчетах [6,7] использовалось простое приближение для учета влияния конечной толщины пленки на константу электрон-фононного взаимодействия

$$g = g_0 - \frac{g_1(4\pi a M / \lambda_F)}{M} = g_0 - \frac{g_1(2k_F a M)}{M}, \tag{9}$$

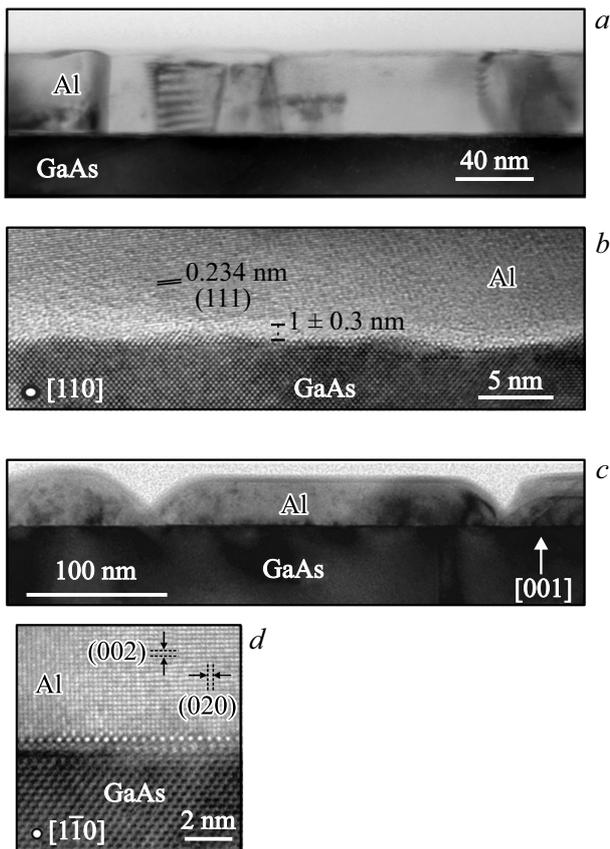
где  $a$  — межатомное расстояние,  $\lambda_F$  и  $k_F$  — соответственно, фермиевская длина волны и волновой вектор,  $[g_0 N(0)]_{bulk} = 0.18$  — табулированная величина для массивного алюминия. Периодическая функция  $g_1(0) = g_1(2\pi)$  являлась подгоночным параметром.

Самосогласованное решение уравнений (1)–(9) позволяет рассчитать величину параметра порядка  $\Delta(z)$ . Критическая температура  $T_c$  определяется как точка, при которой  $\Delta(z) = 0$  является единственным решением системы уравнений. Пример расчета зависимости критической температуры  $T_c$  от толщины алюминии-

вой пленки  $d$ , усредненной по ее флуктуациям, приведен на рис. 4.

### 3. Образцы и методика эксперимента

Методом электронно-лучевого испарения в вакууме  $\sim 10^{-9}$  mbar и молекулярно-лучевой эпитаксии были изготовлены пленки алюминия на подложках из GaAs. Толщина образцов варьировалась от 5 до 100 nm, ширина — 500  $\mu\text{m}$ , длина — 10 mm. Качество пленок контролировалось методом просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения. Было установлено, что все изготовленные образцы являются поликристаллами, причем характерный размер кристаллитов в плоскости пленки сравним или превосходит толщину пленки (рис. 2). На границах зерен наблюдаются дефекты несоответствия кристаллических ориентаций. Однако никаких признаков присутствия чужеродных примесей обнаружено не было. Микроскопический анализ пленок,



**Рис. 2.** Микрофотографии пленок алюминия на подложках из GaAs, полученные методом просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения. (a–b): 50 nm поликристаллическая пленка алюминия, полученная электронно-лучевым испарением. (c–d): 35 nm пленка, полученная методом молекулярно-лучевой эпитаксии. На фотографиях сверхвысокого разрешения (b–d) хорошо видна граница металл–подложка.

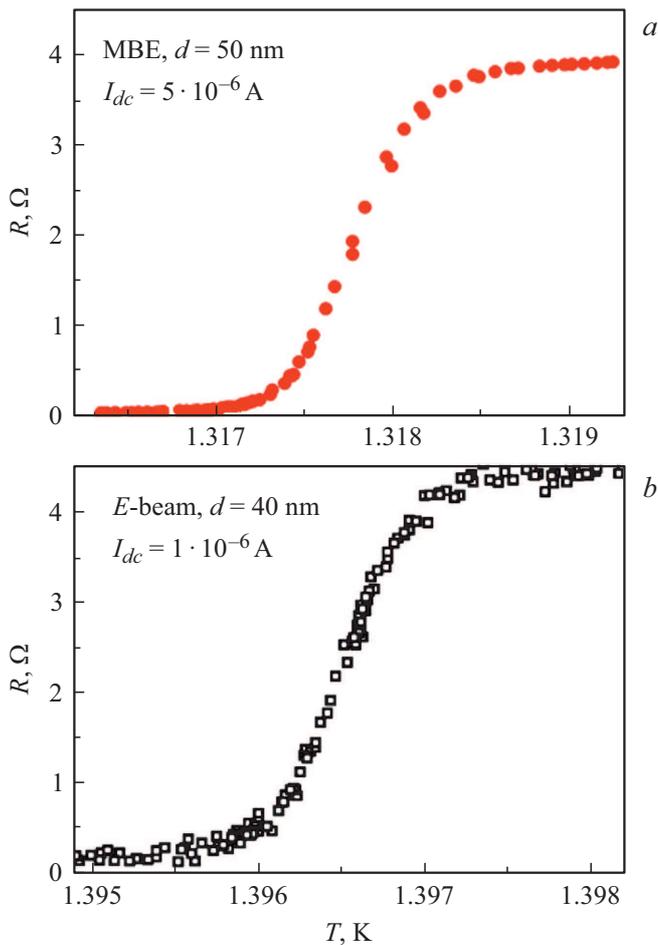
полученных методом молекулярно-лучевой эпитаксии, показал, что размер кристаллитов в плоскости пленки — существенно больше, чем для образцов, полученных электронно-лучевым испарением. Однако, желаемый технологический результат — квазидвумерный монокристалл — получить не удалось.

Экспериментальное исследование  $R(T)$  зависимостей проводилось в четырехконтактной конфигурации как на постоянном, так и переменном токах. Измерительный ток (обычно от 1 до 10  $\mu\text{A}$  для измерений на постоянном токе, и от 0.1 до 1  $\mu\text{A}$  при фазочувствительных измерениях на частоте 17 Hz) выбирался таким образом, чтобы его увеличение на порядок не приводило к заметному смещению температуры фазового перехода. В области температур выше  $T = 1.3$  K измерения проводились в криостате прямой откачки  $^4\text{He}$ . Для работы в более низком температурном диапазоне использовался сорбционный  $^3\text{He}$  криостат. Термометры в обеих системах были прокалиброваны по давлению паров  $^4\text{He}$  и по реперным точкам сверхпроводящих переходов чистых массивных сверхпроводников (Ti, Al, Sn, In). Результирующая абсолютная погрешность определения температуры составляла  $\sim 10$  mK, в то время как относительная — менее 1 mK. Повторные измерения  $T_c$  одного и того же образца в двух различных установках совпадали с точностью до нескольких mK. Забегая вперед, можно отметить, погрешность измерения температуры была существенно меньше размерно-зависимого изменения  $T_c$ .

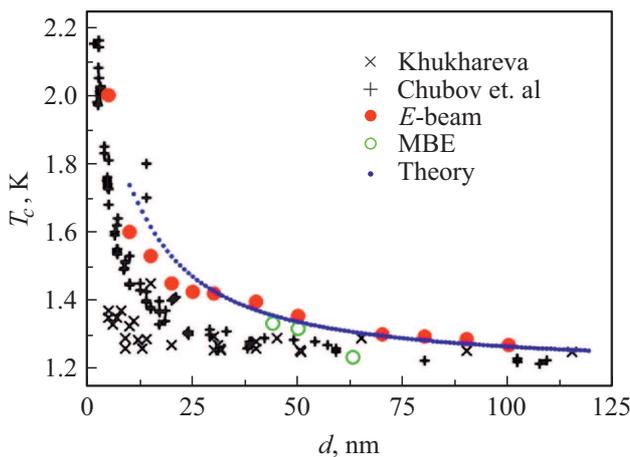
### 4. Результаты и обсуждение

Типичная зависимость сопротивления алюминиевых пленок от температуры  $R(T)$  приведена на рис. 3. Определяя критическую температуру сверхпроводящего перехода как точку, при которой сопротивление падает в 2 раза по отношению к нормальному состоянию, можно построить зависимость  $T_c$  от толщины пленки  $d$  (рис. 4). Четко прослеживается зависимость: чем тоньше пленка, тем выше критическая температура. Для самого тонкого образца с толщиной 5 nm критическая температуры увеличивается практически вдвое по сравнению со значением для массивного алюминия  $T_c(\text{массив}) = 1.19$  K. Наши результаты хорошо согласуются с более ранними исследованиями [3,4]. Разумно предположить, что структура слабосвязанных звеньев [5], которая могла бы гипотетически сформироваться, должна была бы радикально отличаться для пленок различного качества, выращенных на различных подложках. Следовательно, должен существовать еще и некий „универсальный“ механизм, ответственный за изменение критической температуры в тонких пленках сверхпроводников.

Строго говоря, в настоящей работе осцилляции критической температуры в зависимости от толщины пленки  $T_c(d)$ , наблюдение которых было бы сильным ар-



**Рис. 3.** Зависимость сопротивления от температуры  $R(T)$  для алюминиевой пленки: (а) с толщиной  $d = 50$  nm, выращенной методом молекулярно-лучевой эпитаксии; и (б) с толщиной  $d = 40$  nm, полученной испарением электронным лучем.



**Рис. 4.** Зависимость критической температуры  $T_c$  пленки алюминия от ее толщины  $d$ . Сплошные кружки (●) — образцы, полученные методом испарения электронным лучем; окружности (○) — образцы, полученные методом молекулярно-лучевой эпитаксии; кресты (×) — на подложках из стекла [3]; кресты (+) — на подложках из стекла и/или кварца [4]; точки (·) — теоретический расчет. Критическая температура массивного алюминия  $T_c(\text{массив}) = 1.19$  K.

гументом в пользу наличия КРЭ, не наблюдались по причине невозможности изготовления нашими методами однородных по толщине пленок с точностью до одного атомного монослоя. Однако, в недавней работе [9] было показано, что учет квантового размерного эффекта, приводящего к перенормировке плотности электронных состояний и константы электрон-фононного взаимодействия, позволяет адекватно описать рост  $T_c$  в сверхпроводящих пленках алюминия за счет „усреднения“ осциллирующей зависимости  $T_c(d)$ . Исходя из сказанного, нами делается вывод, что представленные экспериментальные результаты могут свидетельствовать в пользу адекватности модели на базе уравнений Боголюбова–де Жена с учетом КРЭ [6–7].

### 5. Заключение

Были экспериментально исследованы высококачественные поликристаллические пленки сверхпроводящего алюминия на подложках из GaAs. Был обнаружен заметный рост критической температуры сверхпроводящего перехода с уменьшением толщины пленки. Результаты хорошо коррелируют с более ранними наблюдениями на аналогичных образцах изготовленных различными методами и на различных подложках, что подтверждает универсальность явления. Эффект интерпретируется как проявление квантового размерного эффекта, влияющего как на плотность состояний электронов, так и на электрон-фононное взаимодействие. Теоретический анализ на базе уравнений Боголюбова–де Жена дает удовлетворительное количественное согласие с данными эксперимента. Хочется верить, что наши результаты послужат стимулом для дальнейших исследований.

### Благодарности

Публикация подготовлена в ходе работы совместного Российско-Греческого проекта RFMEFI61717X0001 и T4ΔPΩ-00031. Анализ результатов и подготовка текста статьи проводились КЮА и были поддержаны грантом № 19-01-050 в рамках Программы „Научный фонд Национального исследовательского университета „Высшая школа экономики“ (НИУ ВШЭ)“ в 2019–2020 гг. и в рамках государственной поддержки ведущих университетов Российской Федерации „5-100“.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

[1] A.I. Shal’nikov. Nature **9**, 142 (1938).  
 [2] T.F. Stromberg, C.A. Swenson. Phys. Rev. Lett. **9**, 370 (1962).  
 [3] И.С. Хухарева. ЖЭТФ **43**, 1173 (1963).

- [4] П.Н. Чубов, В.В. Еременко, Ю.А. Пилипенко. *ЖЭТФ* **55**, 752 (1968).
- [5] В.Л. Гинзбург. *ЖЭТФ* **47**, 2318 (1964).
- [6] A.A. Shanenko, M.D. Croitoru, F.M. Peeters. *Europhys. Lett.* **76** 3, 498 (2006).
- [7] A.A. Shanenko, M.D. Croitoru, F.M. Peeters. *Phys. Rev. B* **75**, 014519 (2007).
- [8] D.A. Luh, T. Miller, J.J. Paggel, T.-C. Chiang. *Phy. Rev. Lett.* **88**, 256802 (2002).
- [9] K.Yu. Arutyunov, V.V. Zavialov, E.A. Sedov, I.A. Golokolenov, A.A. Zarudneva, K.V. Shein, I.N. Trun'kin, A.L. Vasiliev, G. Konstantinidis, A. Stavriniadis, G. Stavriniadis, M.D. Croitoru, A.A. Shanenko. *Phys. Status Solidi RRL* **13**, 1800317 (2019).

*Редактор К.В. Емцев*