

УДК 538.9

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ПАРАМЕТРА ПОРЯДКА В ТОНКИХ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ ПЛЕНКАХ АЛЮМИНИЯ

© 2025 г. Д. Г. Безымянных¹, Н. Г. Пугач^{1,*}, Е. А. Седов^{1,2}, К. Ю. Арутюнов^{1,3}

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики», Москва, Россия

²Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Физический институт имени П.Н. Лебедева Российской академии наук, Москва, Россия

³Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физических проблем имени П.Л. Капицы Российской академии наук, Москва, Россия

*E-mail: prugach@hse.ru

Поступила в редакцию 06.09.2024 г.

После доработки 18.10.2024 г.

Принята к публикации 28.10.2024 г.

Теоретически исследованы осцилляции параметра порядка, возникающие в результате пространственного квантования электронных состояний в квантовой яме, образованной стенками тонкой пленки сверхпроводящего алюминия. В таких объектах с уменьшением толщины наблюдается заметный рост критической температуры и уширение сверхпроводящего перехода. Эти эффекты интерпретируются как проявление квантового размерного эффекта, влияющего на плотность состояний электронов и, соответственно, влияющие на различные электронные свойства тонких пленок.

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

DOI: 10.31857/S0367676525020288, EDN: DTYEZV

ВВЕДЕНИЕ

На ранних этапах изучения сверхпроводимости считалось, что это – свойство материала. Однако, позже было обнаружено, что в тонких пленках критическая температура T_c отличается от табулированного значения для того же материала [1]. При этом оказалось, что в каких-то материалах T_c пленок ниже (например, в ниобии [2]), а в других – наоборот, выше (например, в алюминии [3, 4]) по сравнению с массивным образцом. С развитием микро- и нанотехнологий выяснилось, что и в квазидимерных сверхпроводящих каналах (нанопроводах) T_c может существенно отличаться от трехмерного значения [5]. За более чем вековую историю исследования сверхпроводимости накопилось значительное количество экспериментального материала и теоретических моделей по данному вопросу. Однако по сей день в научном сообществе нет всеми принятого объяснения этого загадочного эффекта.

Можно констатировать, что, по всей видимости, существует несколько различных механизмов, влияющих на амплитуду параметра порядка (более конкретно – критическую температуру) низкоразмерного сверхпроводника. Однако

из всего многообразия, можно выделить один, квантовый размерный эффект (КРЭ), который с неизбежностью должен в той или иной мере учитываться. Естественно, может оказаться, что для данного набора образцов (например, тонких пленок некого сверхпроводника на конкретной подложке, изготовленных определенным способом) доминирующим может оказаться другой вклад. С уменьшением размерности и размеров системы КРЭ должен с необходимостью приниматься во внимание [6–8]. Стоит отметить, что данная тема остается актуальной, что подтверждается недавними исследованиями [9].

В настоящей работе на основе микроскопических уравнений Горькова и с учетом КРЭ было рассчитано пространственное распределение амплитуды параметра порядка Δ в тонких пленках алюминия, где, согласно многочисленным литературным данным, критическая температура существенно зависит от толщины пленки d . Полученные зависимости $\Delta(z)$ позволяют объяснить увеличение среднего значения T_c , что обсуждалось ранее в ряде работ [5–12]. Наряду с этим проявлением, из КРЭ следует осциллирующая зависимость параметра порядка $\Delta(z)$ в толще образца, что приводит к размытию δT_c сверхпро-

водящего перехода $R(T)$ в наблюдении, подтверждаем экспериментально [11].

МОДЕЛЬ

Вклад эффекта размерного квантования в сверхпроводящие свойства может быть понят на качественном уровне очень просто. Рассмотрим простой металл с параболическим законом дисперсии $E(p)$. Если один из размеров системы настолько мал, что квантовым размерным эффектом нельзя пренебречь, то для любого перпендикулярного направления в плоскости пленки зависимость $E(p)$ вырождается в систему размерно-квантованных уровней E_n . Вхождение каждого такого уровня в энергетическое «окно» $\mu \pm \hbar\omega_D$, где μ – химический потенциал, а ω_D – дебаевская частота, соответствует условию резонанса, приводящего к сингулярности плотности состояний и, соответственно, возрастанию критической температуры T_c .

Для исследования влияния пространственного квантования состояний электронов в квантовой потенциальной яме, образованной границами сверхпроводящей пленки на величину сверхпроводящего параметра порядка $\Delta(r)$ был использован формализм уравнений Горькова. Для решения квантовомеханической задачи выбран метод функций Грина, которые находятся из уравнений Горькова в рамках микроскопической теории сверхпроводимости БКШ. Для системы, ограниченной в пространстве в одном из измерений толщиной пленки d , уравнения Горькова в пространственно-неоднородном случае имеют следующий вид:

$$\begin{cases} (i\omega + \hat{\xi})G_\omega(r, r') + \Delta(r)F_\omega(r, r') = \delta(r - r'), \\ (i\omega + \hat{\xi})F_\omega(r, r') + \Delta^*(r)G_\omega(r, r') = 0. \end{cases} \quad (1)$$

Здесь $\Delta(r)$ – величина энергетической щели, которая принимается за амплитуду сверхпроводящего параметра порядка, $G_\omega(r, r')$ и $F_\omega(r, r')$ – нормальная и аномальная функции Грина, соответственно, в представлении Мацубары, ω – мацубаровская частота. Решение системы (1) необходимо подставить в уравнение самосогласования:

$$\Delta^*(r) = |g|T\sigma_\omega F_\omega(r, r') \quad (2)$$

В данном уравнении g – константа электрон-фононного взаимодействия, T – температура.

В качестве сверхпроводника был взят алюминий. Для расчетов использовались следующие параметры: T_c (массив) = 1.2, ориентация (111) и параметр решетки 0.405 нм, типичные для использованных в настоящей работе эпитаксиальных пленок алюминия [12]. Пленка считалась ограниченной в одном направлении $z \in \{0, d\}$,

где $d = 5–100$ нм – толщина пленки, и бесконечной в двух других направлениях. Предполагалось, что нормальная и аномальная функции Грина обращаются в ноль на границах пленки. Уравнения Горькова решались численно при температуре, близкой к T_c . Пространственное распределение параметра сверхпроводящего порядка получено из уравнения самосогласования (2). Здесь мы пренебрели возможным изменением электрон-фононного взаимодействия в тонких пленках. Эффект зависит от близости к границе, и его влияние существенно только в очень тонких образцах порядка нескольких атомных слоев.

На рис. 1 изображены распределения параметра порядка внутри пленок различной толщины, возникающие в результате пространственного квантования.

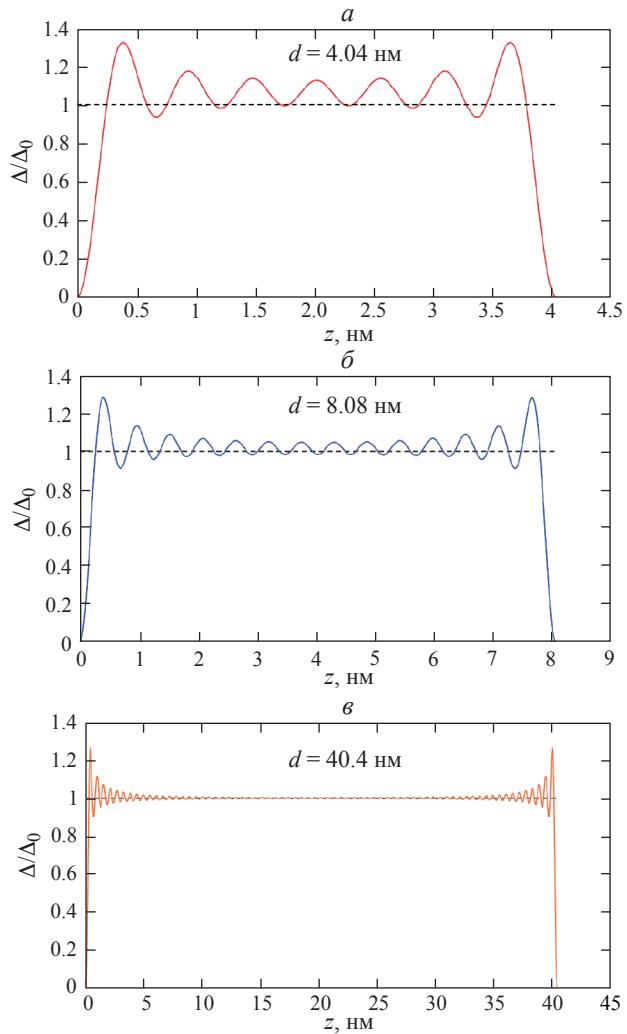


Рис. 1. Расчетная зависимость $\Delta(z)/\Delta_0$ от координаты z поперек пленки алюминия с толщинами, соответствующими 10, 20 и 100 моноатомным слоям для ориентации пленки (111). Расчет сделан для температуры $T = 0.8T_c$. Δ_0 – параметр порядка объемного об разца при той же температуре.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Путем численного моделирования данной задачи были получены графики зависимости параметра порядка, отнесенного к параметру порядка объемного алюминия от координаты внутри пленки. В качестве наиболее представительных мы приводим данные расчетов для трех толщин, соответствующих целочисленному количеству моноатомных слоев алюминия, которые все меньше длины когерентности (рис. 1). В более толстых пленках, больших или порядка ξ , осцилляции параметра порядка затухают от границ и выходят на плато в середине пленки. Эта тенденция наблюдается уже в достаточно тонких пленках (рис. 1 σ). Хорошо видно, что для пленок из 10 и 20 моноатомных слоев значение параметра порядка $\Delta(z)$ для подавляющего большинства значений координаты z лежит выше соответствующей величины для массивного алюминия Δ_0 при той же температуре. Хотя связь экспериментально измеряемой критической температуры T_c с осциллирующим по толщине параметром порядка $\Delta(z)$ в режиме КРЭ не является тривиальной, но обозначенное выше наблюдение качественно объясняет природу увеличения критической температуры в тонких пленках алюминия. Обсуждение этого явления, подробно исследованного в ряде публикаций [2–12], выходит за рамки настоящей работы.

Для всех рассмотренных случаев явно видна тенденция увеличения относительной амплитуды квантовых осцилляций с уменьшением толщины вдали от границ образца, что качественно согласуется с расчетами при других параметрах [7, 8]. Расчетная зависимость имеет осциллирующий характер. Квазимпульс электронов квантуетя в направлении, перпендикулярном плоскости пленки z в квантовой яме в зависимости от ее ширины, т.е. в нашем случае – толщины пленки d . В результате возникают осцилляции плотности состояний электронов вблизи уровня Ферми, что, в свою очередь, приводит к осциллирующей пространственной зависимости параметра порядка по толщине пленки. Период осциллирующей зависимости пропорционален длине волны де Броиля π/k_F . Из расчета видно, что пространственные осцилляции хорошо проявляются в достаточно тонких пленках, меньше или порядка длины когерентности. Отсюда можно сделать вывод, что и другие эффекты, связанные с пространственным квантованием сверхпроводящих характеристик образцов, например, зависимость критической температуры от толщины пленки, обнаруженная экспериментально [2–4, 9–12], должны проявляться на таких масштабах. Для алюминия это составляет десятки нанометров, что гораздо больше межатомных расстояний. Квантовые размерные эффекты в транспортных несверхпроводящих свойствах обычно проявляются в гораздо более тон-

ких пленках. Это – следствие малости параметра сверхпроводящего порядка по сравнению с энергетическим масштабом электронов в металле, т.е. энергией Ферми.

Типичная зависимость сопротивления алюминиевых пленок от температуры $R(T)$ приведена на рис. 2. 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 [10–12]. Четко прослеживается зависимость: чем тоньше пленка, тем выше критическая температура и тем шире сам фазовый переход $R(T)$. Для самого тонкого образца с толщиной 5 нм критическая температура увеличивается в 1.3 раза по сравнению со значением для массивного алюминия $T_c(\text{массив}) = 1.19$ К. Обозначенные экспериментальные результаты хорошо согласуются с более ранними исследованиями [2–4].

Строго говоря, в экспериментах [10–12] осцилляции критической температуры в зависимости от толщины пленки $T_c(d)$ с периодом меньше нанометра, наблюдение которых было бы сильным аргументом в пользу наличия КРЭ, не наблюдались по причине невозможности изготовления использованными методами однородных по толщине пленок с точностью до одного атомного монослоя. Наряду с увеличени-

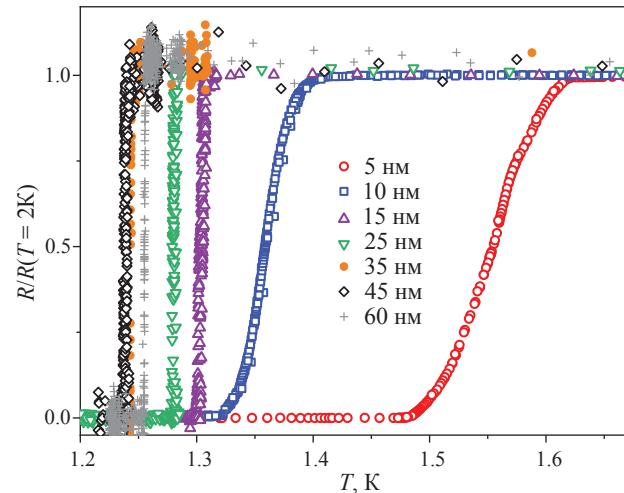


Рис. 2. Типичные $R(T)$ зависимости для эпитаксиальных пленок алюминия на сапфировой подложке [11]. Четко прослеживаются две зависимости: чем тоньше пленка, тем выше критическая температура T_c , и тем больше ширина сверхпроводящего перехода δT_c . Данные по 60 нм пленке (+) выбиваются из этой тенденции. Необходимо иметь в виду, что обозначенные на графике величины соответствуют показаниям кварцевого датчика толщины в камере изготовления. Однако реальная толщина металлической пленки, измеренная, например, методом просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения, может отличаться от ожидаемой [10–12].

ем T_c , в самых тонких образцах проявляется также существенное «размытие» формы $R(T)$ перехода (рис. 2). Это наблюдение является косвенным экспериментальным доказательством эффекта пространственных осцилляций параметра порядка по толщине пленки сверхпроводника, естественным образом следующего из настоящих расчетов (рис. 1). Относительное увеличение амплитуды осцилляций параметра порядка по толщине $\Delta(z)$, существенное в самых тонких пленках (рис. 1), формально эквивалентно увеличению пространственной «неоднородности» образца. Пленка металла как бы разбивается на чередующиеся слои с большей или меньшей плотностью состояний, что в сверхпроводящем состоянии приводит к пространственным осцилляциям параметра порядка. Эффект экспериментально проявляется как увеличение ширины сверхпроводящего перехода δT_c (рис. 2): слои с большей плотностью состояний переходят в сверхпроводящее состояние при более высоких температурах, чем слои с меньшей плотностью состояний. Таким образом, КРЭ с необходимостью приводит к уширению формы $R(T)$ перехода даже в пределе идеально однородной по толщине двумерной системы. Наряду с неизбежными дефектами (например, вариациями толщины пленки), КРЭ – один из механизмов, объясняющих уширение сверхпроводящего перехода в тонких пленках, полученных методом молекулярно-лучевой эпитаксии и обладающих высокой степенью однородности (рис. 2) [9–12].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, были рассчитаны пространственные распределения параметра сверхпроводящего порядка по толщине сверхпроводящих пленок алюминия. Расчет выполнен методом функций Грина при учете квантования электронных состояний в квантовой яме, образованной

пленкой. Показано, что пространственное квантование радикально влияет на сверхпроводящие свойства пленок с толщиной меньше или порядка длины когерентности. Имея сходную причину, это может служить иллюстрацией квантового размерного эффекта и объяснить экспериментальный факт, что у алюминиевой пленки критическая температура T_c и ширина сверхпроводящего перехода δT_c значительно увеличиваются при уменьшении ее толщины. Публикация подготовлена при поддержке Центра фундаментальных исследований НИУ ВШЭ, НУЛ Квантовой наноэлектроники.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Shal'nikov A.I. // Nature. 1938. V. 9. P. 142.
2. Stromberg T.F., Swenson C.A. // Phys. Rev. Lett. 1962. V. 9. P. 370.
3. Хухорева И.С. // ЖЭТФ. 1962. Т. 41. №3. С. 728; Khukhareva I.S. // Sov. Phys. JETP. 1962. V. 14. No. 3. P. 526.
4. Chubov P.N., Eremenko V.V., Pilipenko Yu.A. // Sov. Phys. JETP. 1969. V. 55. No. 3. P. 752.
5. Shanenko A.A., Croitoru M.D., Zgierski M. et al. // Phys. Rev. B. 2006. V. 74. Art. No. 052502.
6. Blatt J.M., Thompson C.J. // Phys. Rev. Lett. 1963. V. 10. P. 332.
7. Shanenko A.A., Croitoru M.D., Peeters F.M. // Europhys. Lett. 2006. V. 76. No. 3. P. 498.
8. Shanenko A.A., Croitoru M.D., Peeters F.M. // Phys. Rev. B. 2007. V. 75. Art. No. 014519.
9. van Weerdenburg W.M.J., Kamlapure A., Fyhn E.H. et al. // Sci. Advances. 2023. V. 9. No. 9. P. 5500.
10. Arutyunov K.Yu., Zavialov V.V., Sedov E.A. et al. // Phys. Stat. Sol. RRL. 2019. V. 13. Art. No. 1800317.
11. Арутюнов К.Ю., Седов Е.А., Голоколенов И.А. и др. // ФТТ. 2019. Т. 61. № 9. С. 1609; Arutyunov K.Y., Sedov E.A., Golokolenov I.A. et al. // Phys. Solid State. 2019. V. 61. No. 19. P. 1559.
12. Седов Е.А. Исследование критической температуры сверхпроводящего перехода тонких пленок алюминия. Дисс. ... канд. тех. наук. Москва: НИУ ВШЭ, 2024. 127 с.

Spatial variation of superconducting order parameters in thin aluminum films

D. G. Bezmyannykh^a, N. G. Pugach^{a,*}, E. A. Sedov^{a,b}, K. Yu. Arutyunov^{a,c}

^a*National Research University Higher School of Economics, Moscow, 101000, Russia*

^b*P.N. Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119991, Russia*

^c*P.L. Kapitza Institute for Physical Problems of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119334, Russia*

*e-mail: npugach@hse.ru

Oscillations of the order parameter arising because of spatial quantization of electronic states in a quantum well formed by the walls of a thin film of superconducting aluminum were theoretically studied. In such objects, with decreasing thickness, a noticeable increase of critical temperature and broadening of superconducting transition are observed. These effects are interpreted as the manifestation of quantum size effect that affects the density of states of electrons and, hence, other various electronic properties of thin films.

Keywords: superconductivity, critical temperature, thin films, quantum size effect.