

ЛОКАЛИЗАЦИЯ И ЭФФЕКТ БЛИЗОСТИ В УЛЬТРАТОНКИХ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ ПЛЕНКАХ

Д.Л.Шановалов¹⁾

Институт Физических проблем им. П.Л.Капицы РАН
117334, Москва

Поступила в редакцию 28 июня 1994 г.

Изучено влияние металлических (Ag, Au, Mg) и сверхпроводящих (Zn) покрытий на свойства ультратонких ($< 50 \text{ \AA}$) однородных пленок аморфного Bi. Обнаружено, что тонкие металлические покрытия повышают критическую температуру сверхпроводимости. Полученные данные подтверждают, что сверхпроводимость однородно неупорядоченных пленок определяется эффектами локализации электронов.

Как известно, сильный немагнитный беспорядок разрушает сверхпроводимость [1, 2]. Критическая температура сверхпроводимости T_c тонких пленок систематически уменьшается при уменьшении их толщины d [3]. В настоящее время принято считать, что в однородных аморфных пленках этот эффект связан с интерференцией кулоновского взаимодействия электронов и рассеяния на примесях [1, 4, 5]. Однако прямого экспериментального подтверждения роли дальнедействующего кулоновского взаимодействия в двумерных системах до сих пор нет [6]. Заслуживает внимания и традиционный подход, в котором понижение T_c тонких пленок с уменьшением их толщины объясняется влиянием поверхности, эффектом близости, зарядовыми эффектами и др. [3, 7, 8].

В данной работе мы изменяли условия на поверхности тонкой пленки аморфного сверхпроводника, напыляя на нее нормальный металл или сверхпроводник с низким T_c . Если существенны процессы, связанные с беспорядком, то основным параметром, определяющим T_c является в двумерном случае сопротивление пленки "на квадрат" R_{\square} . Уменьшение сопротивления N/S сэндвича за счет напыления металла должно привести к уменьшению эффектов, связанных с локализацией электронов. При малых толщинах металлической пленки в конкуренции локализации и эффекта близости мы можем ожидать, что T_c двухслойной системы будет выше первоначального значения.

При изучении ультратонких двухслойных систем нужно быть внимательным в отношении однородности пленок и возможного образования соединений с более высокими T_c . Однородность в нашем эксперименте достигалась за счет конденсации пленок при гелиевой температуре на подложку, предварительно покрытую *in situ* монослоем Ge [3]. Об образовании соединений можно судить только на основании экспериментальных данных.

В качестве сверхпроводника для наших N/S сэндвичей были использованы пленки холодноосажденного аморфного висмута ($T_{c0}^{Bi} \simeq 6,1 \text{ K}$ [9]). Предварительные результаты о напылении серебра на островковые пленки висмута были опубликованы в [10]²⁾.

¹⁾ e-mail: shap@magnit.msk.su.

²⁾ В оригинальной статье была допущена опечатка и шкала R_{\square} на рис.3 $T_c(R_{\square})$ должна быть в 10 раз больше (см. т.53, вып.12). Пленки Bi напылялись на стекло и имели $T_c \simeq 3 \text{ K}$ (по середине перехода) при $R_{\square} \simeq 15 \text{ k}\Omega$. Такие пленки Bi являются островковыми недалеко от

Напыление пленок и изучение их свойств производились в приборе, полностью погруженном в ванну с ${}^4\text{He}$. Пленки конденсировались при $T \simeq 8\text{K}$ на стекло, покрытое непосредственно перед этим слоем $6-8\text{Å}$ германия или сурьмы. Получаемые таким способом пленки начинают проводить уже при толщине $\simeq 4\text{Å}$ и являются сплошными и однородными при монослойных толщинах [12, 13]. Температура подложки не превышала 15K . Сопротивление измерялось четырехконтактным методом. Система заслонок позволяла напылять до 6 сэндвичей одновременно с разными толщинами S и N слоя и с хорошей воспроизводимостью при толщинах больше 5Å . Толщина пленок определялась по сдвигу частоты кварцевого резонатора с точностью $0,02\text{Å}$ (для Bi и Ag). При определении толщины использовались плотности массивных материалов. В начале мы напыляли несколько пленок висмута на одной подложке и убеждались в совпадении их свойств. Затем на них последовательно напылялся в небольших количествах второй металл, измерялось сопротивление "на квадрат" R_{\square} и записывался температурный ход сопротивления. T_c определялось по середине сверхпроводящего перехода. Такая процедура повторялась несколько раз и сэндвич получался в результате многократных напылений металла на одну и ту же пленку висмута.

На рисунках значками \odot обозначены T_c исходных пленок висмута. Линиями на рисунках соединены точки для одного и того же сэндвича N/Bi при изменении толщины покрытия d_N (N=Ag, Au, Zn, Mg). Все точки \odot хорошо ложатся на кривую $T_c(R_{\square})$ для одной пленки Bi. На рис.1 представлены данные для сэндвичей, когда покрытием является нормальный металл (Ag, Au), а на рис.2 - сверхпроводник (Zn). Качественно результаты совпадают. На рис.1 добавлена также шкала толщин пленок Bi, дающая представление о масштабах изменения T_c с толщиной. Свойства пленок Bi, полученных в нашей работе, хорошо совпадали с литературными данными [12]. Уже начиная с толщин $\geq 6\text{Å}$ и сопротивлений $\leq 10^4\text{Ом}$ пленки висмута имели логарифмическую зависимость проводимости от температуры $R_{\square}^{-1} \sim A \cdot (e^2/\pi h) \ln T$. В перпендикулярном магнитном поле 36кЭ коэффициент A близок к единице ($A \simeq 1,1$), что соответствует теории слабой локализации для однородных пленок [14]. При изменении толщины пленок от 10Å ($T_c \simeq 2\text{K}$) до 100Å ($T_c \simeq 5,9\text{K}$) наклон верхнего критического поля H_{c2} при $T=T_c$ менялся всего с $\simeq 25\text{кЭ/К}$ до значения 11кЭ/К , характерного для толстых пленок висмута [15]. По наклону H_{c2} при $T=T_c$ мы можем оценить коэффициент диффузии электронов $D \simeq 1\text{см}^2/\text{с}$.

На рис. 1 представлены данные для семи сэндвичей Ag/Bi. Получено хорошее совпадение для пленок Ag/Bi и Au/Bi, хотя серебро не образует сверхпроводящих соединений с висмутом, а в системе золото-висмут имеется соединение Au_2Bi с $T_c \simeq 1,8\text{K}$ [16].

При малой толщине серебра $T_c(R_{\square})$ сэндвичей Ag/Bi возрастает почти так же как и у исходной пленки при напылении висмута (рис.1). Наиболее интересным является возрастание T_c в случае напыления серебра на пленку толщиной $6,5\text{Å}$ и $R_{\square}(14\text{K})=6,7\text{кОм}$ (нижняя кривая на рис.1). Если воспользоваться данными [12], где измерения T_c пленок висмута, приготовленных в сходных условиях, были произведены вплоть до $0,4\text{K}$, или экстраполировать T_c висмута по нашим данным и [12] к нулю, так как $T_c \sim -1/d$, то пленка

порога протекания ($\simeq 10-15\text{Å}$ в наших условиях) (см. например работу [11]). Возрастание " T_c " островковой пленки Bi при напылении на нее серебра является тривиальным эффектом.)

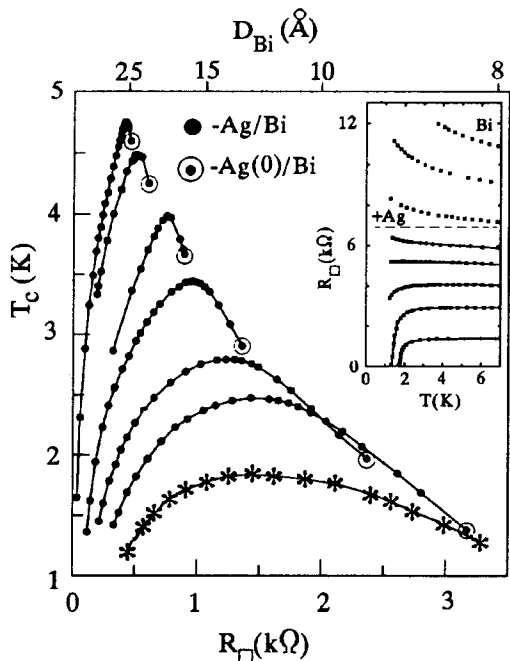


Рис.1

Рис.1. Зависимость T_c сэндвичей Ag/Bi (•, *) от поверхностного сопротивления R_{\square} . ○ - T_c исходных пленок Bi. На вставке: $R(T)$ - пленки Bi (точки) при последовательном увеличении ее толщины. Начиная с $d_{Bi}=6,5 \text{ \AA}$ на эту пленку напыляется серебро (точки соединены линиями). На основном рисунке $T_c(R_{\square})$ этого сэндвича изображены звездочками.

Рис.2. Зависимость T_c сэндвичей Zn/Bi (•) от поверхностного сопротивления R_{\square} . ○ - T_c исходных пленок Bi. На вставке: T_c сэндвичей Zn/Bi (○) от толщины слоя цинка.

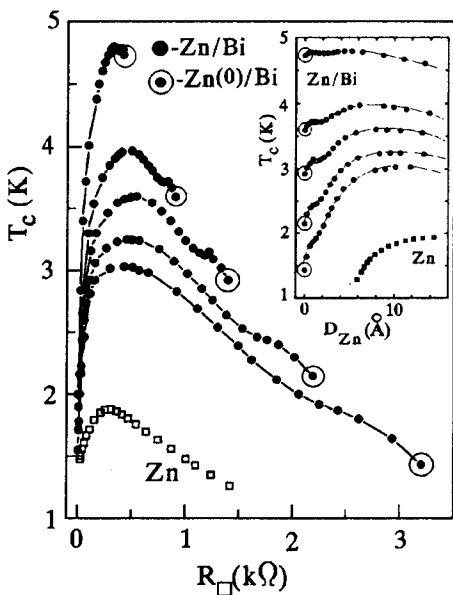


Рис.2

висмута толщиной $6,5 \text{ \AA}$ должна быть еще несверхпроводящей. Напыление на ее поверхность серебра приводит к возникновению сверхпроводимости при увеличении количества несверхпроводника в системе. Максимальное T_c пленки Ag/Bi($6,5 \text{ \AA}$) оказалось $1,8 \text{ K}$. При толщине серебра в 20 \AA все еще наблюдалось падение сопротивления при понижении температуры. Заметим, что в холодноосажденных смесях $Ag_x Bi_{1-x}$ T_c обращается в нуль при $x \approx 0,5$ [17]. На вставке к рис.1 приведены экспериментальные записи $R(T)$ исходной пленки висмута (точки) и сэндвича Ag/Bi($6,5 \text{ \AA}$) (линии) после напыления серебра на эту пленку. Это типичная картина перехода изолятор-сверхпроводник в однородных системах [12].

На рис. 3 мы привели T_c от толщины покрытия для нескольких пленок с рис. 1. Здесь же изображены две кривые для пленок Au/Bi. Рост T_c наблюдается в малых толщинах покрытия, а при больших толщинах T_c сэндвичей выходит на зависимость $T_c \sim \exp(-d_{Ag}/d_{Bi})$, характерную для эффекта близости в тонких пленках [18]. С увеличением толщины исходных пленок висмута, максимум T_c сэндвичей сдвигается в сторону меньшей толщины металла. Это показывает, по нашему мнению, что рост T_c не

связан с поверхностными эффектами, так как в этом случае все изменения происходили бы при одной и той же толщине металлического покрытия. Для пленки Bi толщиной 23 \AA максимуму T_c соответствует толщина серебра всего в 1 \AA . При такой толщине не имеет смысла говорить об индивидуальных свойствах пленки серебра и тем более об экранировке металлической пленкой кулоновского взаимодействия в сверхпроводнике.

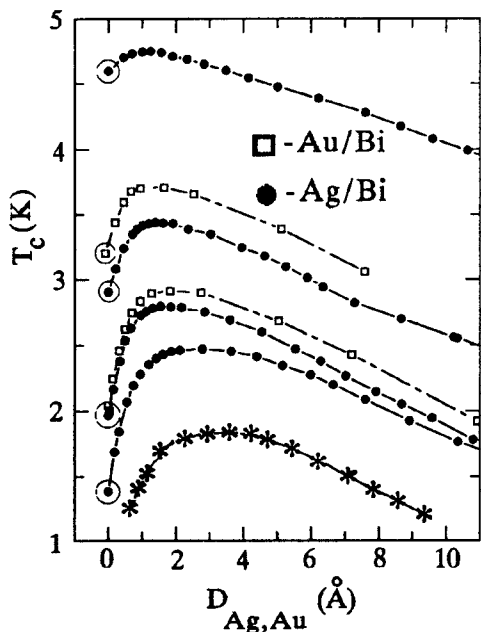


Рис.3

Рис.3. Зависимость T_c сэндвичей Ag/Bi (•, *) (Au/Bi - □) от толщины слоя серебра(золота). ○ - T_c исходных пленок Bi. •, * - точки с рис.1.

Рис.4. Зависимость T_c сэндвичей Mg/Bi (•) от поверхностного сопротивления R_{\square} . ○ - T_c исходных пленок Bi. На вставке: Зависимость сопротивления сэндвичей Mg/Bi от толщины слоя магния.

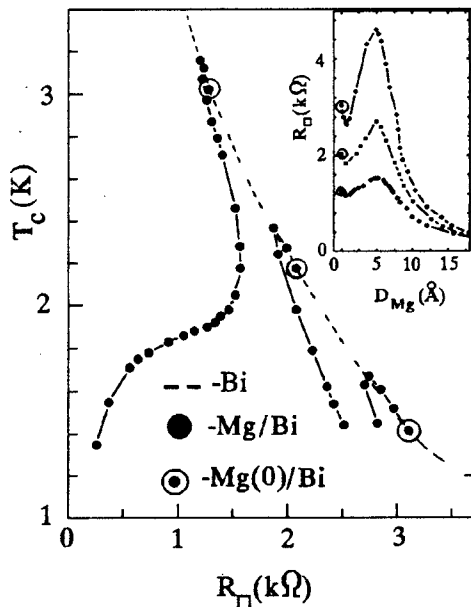


Рис.4

Возрастание T_c максимально для самой тонкой исходной пленки Bi и уменьшается для толстых пленок. Вероятно только то обстоятельство, что удельное сопротивление серебра ($\rho_{Ag} \approx 20 \text{ мкОм}\cdot\text{см}$) меньше, чем у висмута ($\rho_{Bi} \approx 100 \text{ мкОм}\cdot\text{см}$), позволяет увидеть возрастание T_c в относительно толстых пленках висмута.

Подавление сверхпроводимости в сэндвичах из-за эффекта близости должно быть слабее, если в качестве второго металла взять сверхпроводник с меньшим, чем у висмута, T_{c0} . Таким сверхпроводником мы выбрали цинк. Тонкие холодноосажденные пленки Zn в наших экспериментах имели T_{c0} , по-видимому, больше 2 K (рис.2), что может быть связано с образованием аморфной фазы Zn в тонких пленках (контрольное напыление цинка производилось на стекло, покрытое монослоем германия). Как и в случае с металлическими покрытиями, в системе Zn/Bi наблюдается возрастание критической температуры при малых толщинах цинка (см. рис.2 и вставку на нем). На всех кривых

$T_c(d_{Zn})$ и $T_c(R_{\square})$ имеется особенность при толщине цинка $\approx 1 \text{ \AA}$. Мы полагаем, что особенность соответствует толщине, при которой начинает формироваться собственно пленка сверхпроводящего цинка. До этой толщины свойства цинка не определены, а поведение $T_c(R_{\square})$ пленок Zn/Bi почти такое же, как и в системе Ag/Bi. Немонотонную зависимость критической температуры при толщине цинка $\approx 1 \text{ \AA}$, аналогичную изображенной на рис. 2, можно наблюдать даже на пленке висмута толщиной 39 \AA и $T_c = 5,3 \text{ K}$ ($\approx 0,9 T_{c0}$).

Если изучение двухслойных систем производится *in situ*, как в нашем эксперименте, то по особенностям зависимости сопротивления сэндвича от толщины покрытия (d_N) можно определить моменты образования соединений на поверхности. Когда мы попытались использовать в качестве нормального металла магний, то обнаружили, что в пленках Mg/Bi магний до толщины $d_{Mg} \approx 1 \text{ \AA}$ ложится металлом, а потом образуется, по-видимому, неметаллическое соединение, аналогичное аморфному Mg_3Bi_2 [19]. Поскольку образование соединения идет за счет поверхностного слоя висмута, сопротивление возрастает, а T_c падает (рис.4). Вследствие образования соединения MgBi, R_{\square} и T_c сэндвича немоноotonно зависят от толщины магния, но все особенности наблюдаются при одной и той же толщине магниевое покрытие для пленок висмута различной толщины.

Полученные результаты могут быть проанализированы на основании следующих качественных соображений.

Для тонкой пленки однородно неупорядоченного сверхпроводника толщиной $d \ll \sqrt{\hbar D / kT}$ мерой беспорядка является сопротивление пленки $R_{\square} = 2\pi^2 / e^2 \cdot [2\pi \epsilon_F \tau (2k_F d / 3\pi)]^{-1}$ (ϵ_F, k_F - энергия и импульс Ферми, τ - время упругих столкновений электронов) [1]. Понижение T_c с уменьшением толщины и увеличением R_{\square} можно записать в общем виде [1, 4, 5]:

$$T_c = T_c(R_{\square}, T_{c0}, \tau), \quad (1)$$

При малых R_{\square} $(T_{c0} - T_c) / T_{c0} \approx (1/3) g_1 (e^2 / 2\pi^2 \hbar) R_{\square} [\ln(\hbar / kT_{c0}\tau)]^3$ ($g_1 \approx 1$ - константа, описывающая экранированное кулоновское взаимодействие) [1]. Выражения вида (1) описывают уменьшение T_c только за счет усиления кулоновского взаимодействия при рассеянии на примесях, а влиянием беспорядка на электрон-фононное взаимодействие (ЭФВ) с увеличением R_{\square} пренебрегают [1, 4, 5]. Обычно полагают, что T_{c0} уже содержит все поправки к ЭФВ, связанные с беспорядком и конечным τ [1, 4, 5], т.е. T_{c0} - объемное T_c материала пленки.

Исследуемые в нашей работе N/S сэндвичи удовлетворяют условию $d_{N,S} \ll \sqrt{\hbar D / kT}$. С точки зрения электронного транспорта и локализации такая двухслойная пленка является единой системой. T_c системы без учета беспорядка определяется "усредненным" по толщине электрон-фононным взаимодействием $\bar{\lambda}$ [18]:

$$T_{c0} \sim \exp(-1/\bar{\lambda}) \quad (2)$$

$$\bar{\lambda} = \frac{\lambda_N [N_N d_N] + \lambda_S [N_S d_S]}{N_N d_N + N_S d_S} \quad (3)$$

где $N_{N,S}$, $\lambda_{N,S}$ - плотность состояний и константа ЭФВ в N, S соответственно. Для двухслойной системы T_c , получаемое из (2) и (3), должно рассматриваться как новое T_{c0} , а проводимости должны складываться (при малых R_{\square}).

Можно убедиться, воспользовавшись конкретными формулами работ [1, 4, 5] и выражениями (2) и (3), что при напылении на тонкую сверхпроводящую пленку нормального металла ($\lambda_N \simeq 0$) с малым удельным сопротивлением ($\rho_N \leq \rho_S$), начальным изменением T_c системы будет возрастание, которое при больших толщинах d_N сменится падением. Такое возрастание T_c в N/S системе противоречит традиционным представлениям об эффекте близости [18], но является естественным, если учитывать локализацию электронов, поскольку в данном случае поведение определяется в большей мере сопротивлением R_{\square} . Подчеркнем, что в этом рассмотрении T_c определяется не экранировкой металлической пленкой кулоновского взаимодействия в сверхпроводнике, а конкуренцией эффекта близости (уменьшением ЭФВ) и локализации при уменьшении R_{\square} всей системы. Более строгий анализ экспериментальных результатов в настоящее время, по-видимому, не возможен.

Проведенное исследование на пленках висмута однозначно доказывает, что сверхпроводимость тонких однородных пленок аморфных сверхпроводников определяется локализацией электронов, а не поверхностными эффектами.

Автор выражает благодарность М.В.Антокольской за поддержку на всех стадиях работы; Н.В.Заварицкому за интерес к работе и полезное обсуждение; Американскому Физическому Обществу и Центру Исследований в Юлихе, Германия за финансовую поддержку при написании этой статьи.

-
1. H.Fukuyama. *Physica B*. **126**, 306 (1984).
 2. Обзор экспериментальных работ до 1989г. можно найти в: Б.И. Белевцев. УФН **160**, 65 (1990).
 3. M.Strongin, R.S.Thompson, O.F. Kammerer, and J.E.Crow. *Phys.Rev. B*. **1**, 1078 (1970).
 4. А.М. Финкельштейн, Письма в ЖЭТФ, **45**, 37 (1987).
 5. T.R.Kirkpatrick and D.Belitz. *Phys.Rev.Lett.*, **68**, 3232 (1992).
 6. G.Bergmann. *Physica B* **169**, 231 (1991).
 7. J. Simonin *Phys.Rev.B* **33**, 7830 (1986), и ссылки в этой работе.
 8. V.Z.Krezin. *Phys. Rev. B*. **25**, 157 (1982).
 9. Н.В. Заварицкий. Докл. Акад. наук СССР, **86**, 687 (1952).
 10. И.Л.Ландау, Д.Л.Шаповалов, И.А.Паршин, Письма в ЖЭТФ, **53**, 250 (1991).
 11. B.I.Belevtsev, Yu.F.Komnik, and A.V.Fomin. *Journ. Low Temp. Phys.* **75**, 331 (1989).
 12. D.B.Haviland, Y.Liu, and A.M.Goldman, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2180 (1989).
 13. J.M.Valles, Jr., R.C.Dynes, and J.P.Garno, *Phys.Rev.Lett.* **69**, 3567 (1992).
 14. B.L.Al'tshuller, A.G.Aronov, M.E.Gershenson, and Yu.V. Sharvin, *Soviet Scientific Reviews, Section A*, (Harwood Academic), **9**, 225 (1987).
 15. G.Bergmann. *Phys.Rev.B* **7**, 4850 (1973).
 16. K.Mendelsson, editor, in *Progress in Cryogenics*, (A Heywood book) **4**, (1964).
 17. D.Korn, W.Mure, G.J.Zibold, *J. de Physique C-4*, **258** (1974).
 18. P.G.DeGennes. *Rev. Mod. Phys.* **36**, 225 (1964).
 19. Н.Мотт, Э.Дэвис. Электронные процессы в некристаллических веществах. М.: Мир, 1982.