

УДК 538.945

DOI: 10.31040/2222-8349-2021-0-1-39-43

## КВАНТОВЫЙ РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ В СВЕРХПРОВОДНИКАХ

© Е.А. Седов, В.В. Завьялов, К.Ю. Арутюнов

В середине прошлого века было продемонстрировано, что с уменьшением размеров сверхпроводящих структур, например, толщины тонкой пленки, ее критическая температура  $T_C$  сдвигается на некоторую величину. В алюминии и индии она увеличивается, а в ртути, ниобии и свинце она уменьшается. Тем не менее общепринятой теории, объясняющей данный эффект, до настоящего времени нет. В 70-х гг., во время самого большого объема исследований по данной тематике, В.Л. Гинзбург выдвинул предположение, что температура перехода достаточно чистой монокристаллической пленки сверхпроводника будет точно такой же, как и в объемном теле. Однако данное предположение так и не было проверено, и вопрос о природе этого эффекта все еще остается открытым. Для исследования крайне интересен алюминий, в связи с тем, что зависимость  $T_C$  алюминиевой пленки от ее толщины весьма предсказуема, и увеличивается с уменьшением размеров. Несмотря на некоторое количество работ по изучению этой зависимости в алюминии, не всегда удается точно установить соответствие с теорией. Это связано с тем, что характеристики варьируются от образца к образцу, изготовленных даже в одной партии. В нашем случае были изготовлены поликристаллические пленки, размеры кристаллитов в которых сопоставимы с толщиной пленки, и эпитаксиальные образцы с атомарно гладкой поверхностью. Пленки были изготовлены методами электронно-лучевого напыления и молекулярно-лучевой эпитаксии на различные подложки. В рамках модели БКШ критическая температура сверхпроводящего перехода экспоненциально зависит от плотности электронных состояний на уровне Ферми  $N(E_F)$  и константы электрон-фононного взаимодействия  $V$ :  $T_C \sim \exp(-1/[N(E_F)*V])$ . В работе показано, что за счет КРЭ в тонких сверхпроводящих пленках оба параметра  $N(E_F)$  и  $V$  немонотонным образом меняются с толщиной образца. Такое поведение является следствием теории резонанса формы. Предположительно, эффект, оказываемый разупорядоченностью кристаллитов, а также поверхностью или подложкой, не имеет доминирующей роли конкретно в нашем случае, так как пленки алюминия имеют высокое качество, а их толщины выходят далеко за пределы сверхтонких объектов, в которых поверхностные явления начинают играть решающую роль. В результате проделанного исследования были получены экспериментальная и теоретическая зависимости  $T_C$  от толщины пленок, изготовленных разными способами на разных подложках.

Ключевые слова: сверхпроводимость, квантовый размерный эффект, молекулярно-лучевая эпитаксия, галлий арсенид, сапфир.

**Введение.** В современном мире трудно представить жизнь человека без различных электронных устройств, мощность которых с каждым годом растет, а размеры уменьшаются. Казалось бы, что производители давно уже должны были достичь некоторого критического размера электронных компонентов, однако вышеупомянутая тенденция по-прежнему сохраняется. Сохранить темп миниатюризации помогает не только применение новых материалов и технологий изготовления, но и физика нового уровня.

Давно известно, что с уменьшением размерности различных материалов в них проявляются новые эффекты, ненаблюдаемые в телах привычных нам размеров. Такие эффекты принято называть размерными, а когда существенны квантовые поправки, – квантовыми размерными эффектами (КРЭ). Проявляются они во всех материалах и являются по своей сути универсальными, однако в различных веществах их влияние становится доминирующим

СЕДОВ Егор Андреевич, Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики», e-mail: esedov@hse.ru

ЗАВЬЯЛОВ Виталий Вадимович – к.ф.-м.н., Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики»; Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН, e-mail: vzavyalov@hse.ru

АРУТЮНОВ Константин Юрьевич – д.ф.-м.н., Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики»; Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН, e-mail: karutyunov@hse.ru

при разном критическом размере. Как правило, в типичных проводниках вроде меди, проявление КРЭ будет наблюдаться в образцах с толщиной всего в несколько атомарных слоев, так, например, в работе [1] авторам удалось пронаблюдать ступенчатую зависимость характеристик золотого канала на толщинах порядка нескольких нанометров. А в другой работе, посвященной висмуту, КРЭ наблюдался на значительно больших величинах и вносил свой вклад в электрические характеристики образца уже при толщинах в 100–150 нм [2]. Тем не менее влияние КРЭ на различные параметры сверхпроводников, несмотря на их перспективность и непрекращающийся к ним интерес, систематически до сих пор не рассматривалось. Однако первые работы уже были проделаны и исходя из полученных результатов можно сделать вывод о том, что КРЭ наблюдается и в сверхпроводниках [3].

Вероятнее всего, небольшой интерес к изучению квантового размерного эффекта в сверхпроводниках вызван сложностью его детектирования на фоне других явлений, влияющих на изменение характеристик сверхпроводника. Известно, что в сверхпроводящих пленках с уменьшением их толщины изменяется температура перехода  $T_C$  в сверхпроводящее состояние. Так, например, в алюминии и индии она увеличивается, а в свинце и ртути, наоборот, уменьшается [4]. Одно из первых упоминаний такого сдвига  $T_C$  относится к 1938 г., и тем не менее ученые до сих пор не могут дать точного ответа, почему температура перехода изменяется с уменьшением размеров тела. Считается, что за изменение  $T_C$  ответственны два фактора: фононные эффекты [5] и эффект разупорядоченности [6]. Но в таком случае качественно изготовленная пленка не показала бы никакого изменения  $T_C$  относительно объемного образца, однако с улучшением различных техник производства наноструктур, этот сдвиг никуда не исчезает. Таким образом, можно прийти к выводу, что существует еще один эффект, который может существенно влиять на физические свойства сверхпроводящих наноструктур. Считается, что таким эффектом как раз и может быть квантовый размерный эффект [7], но вся трудность состоит в том, что каждый из перечисленных вкладов оказывают влияние друг на друга и на изменение  $T_C$  в целом, а следовательно, выделить из всей плеяды «виновников» именно влияние КРЭ – достаточно сложная задача.

Однако изготовив образец, максимально близкий к монокристаллу, можно минимизировать все остальные вклады и таким образом пронаблюдать влияние КРЭ.

**Методика.** Проблема данного метода заключается в том, что изготовить монокристалл сверхпроводника, подходящего для измерения каких бы то ни было характеристик, практически невозможно. Однако экспериментально установлено, что при помощи молекулярно-лучевой эпитаксии можно вырастить алюминиевую пленку со значительно большим размером гранул, чем при обычном способе напыления [8]. На рис. 1, *a* приведено изображение алюминиевой пленки, изготовленной электронно-лучевым напылением, а на рис. 1, *б* – молекулярно-лучевой эпитаксией. Из фотографий видно, что размер гранул в эпитаксиальной пленке значительно больше, чем в напыленной. А основываясь на анализе образцов, проведенном при помощи атомно-силового микроскопа, мы получили средний размер гранул в плоскости пленки порядка в 200 нм. Более того, шероховатость поверхности эпитаксиальных пленок также значительно меньше, чем у напыленных. Таким образом, качество эпитаксиальных алюминиевых пленок гораздо выше, и несмотря на то, что они по факту не являются монокристаллическими, тем не менее вклад дефектности будет значительно меньше, чем в обычных пленках.

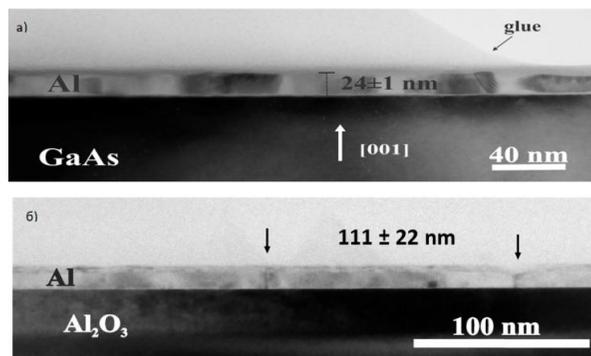


Рис. 1. Алюминиевая пленка, изготовленная электронно-лучевым напылением (*a*); алюминиевая пленка, изготовленная молекулярно-лучевой эпитаксией (*б*)

Для эксперимента было изготовлено два типа образцов, вышеупомянутыми способами, для сравнения степени увеличения критической температуры, на сапфировых и галлий арсенидовых подложках. Предварительный анализ сканирую-

щим микроскопом показал, что на сапфировых подложках поверхность пленок менее шероховата, а соответственно, и ожидаемый сдвиг  $T_C$  в них должен быть меньше, чем в аналогичных пленках на подложке из галлий арсенида.

**Результаты.** В ходе эксперимента были измерены поликристаллические пленки алюминия на подложке из галлий арсенида толщиной от 5 до 100 нм, эпитаксиальные пленки на подложке из сапфира (5–60 нм) и на подложке из галлий арсенида (45–63 нм). К сожалению, в связи с неоптимальной методикой, выбранной для выращивания пленок на подложку из галлий арсенида, структура пленки в них, при толщине ниже 35 нм, представляла из себя массив отдельных островков, и в результате электрическую проводимость таких объектов невозможно было измерить. Поликристаллические же пленки были превосходного качества и показали ожидаемую тенденцию к увеличению  $T_C$  с уменьшением толщины пленок (рис. 2).

Данные результаты отлично сходятся с проделанными ранее экспериментами на алюминиевых пленках [9]. Эпитаксиальные пленки демонстрируют ожидаемо более низкое увеличение критической температуры, чем поликристаллические пленки. Как видно из рис. 2, несмотря на более слабый характер сдвига  $T_C$  относительно объемного алюминия, он тем не менее весьма заметен, а следовательно, можно утверждать о наличии размерного эффекта в сверхпроводнике.

Однако для более точной оценки его вклада в общую величину изменения  $T_C$  необходимо произвести теоретический расчет.

На рис. 3 представлено сравнение форм сверхпроводящих переходов  $T_C$  всех измеренных эпитаксиальных пленок на подложке из сапфира. Из графика можно заметить, что самая толстая пленка имеет не самую низкую температуру сверхпроводящего перехода, и это является достаточно интересной особенностью. Возможным объяснением такого сдвига  $T_C$  60 нм пленки относительно 45 нм и даже 35 нм пленок может послужить теория резонанса формы [10]. Исходя из этой теории в результате уменьшения размеров образца происходит смещение энергетических уровней носителей заряда и увеличении их плотности состояний вблизи уровня Ферми, а в следствии этого – скачкообразное изменение электрических характеристик (рис. 4).

Вполне вероятно, что в ходе эксперимента мы получили результаты, коррелирующие с данной теорией, и изготовленные образцы имеют подходящую толщину, чтобы их  $T_C$  легли на данную зависимость. Тем не менее не стоит с полной уверенностью интерпретировать полученные данные с данной теорией, так как это может быть обусловлено также и тривиально плохим качеством толстой пленки. И для дальнейших выводов необходимо сделать дополнительные измерения с образцами соответствующей толщины.

Dependence of critical temperature vs thickness of aluminum films on different substrates

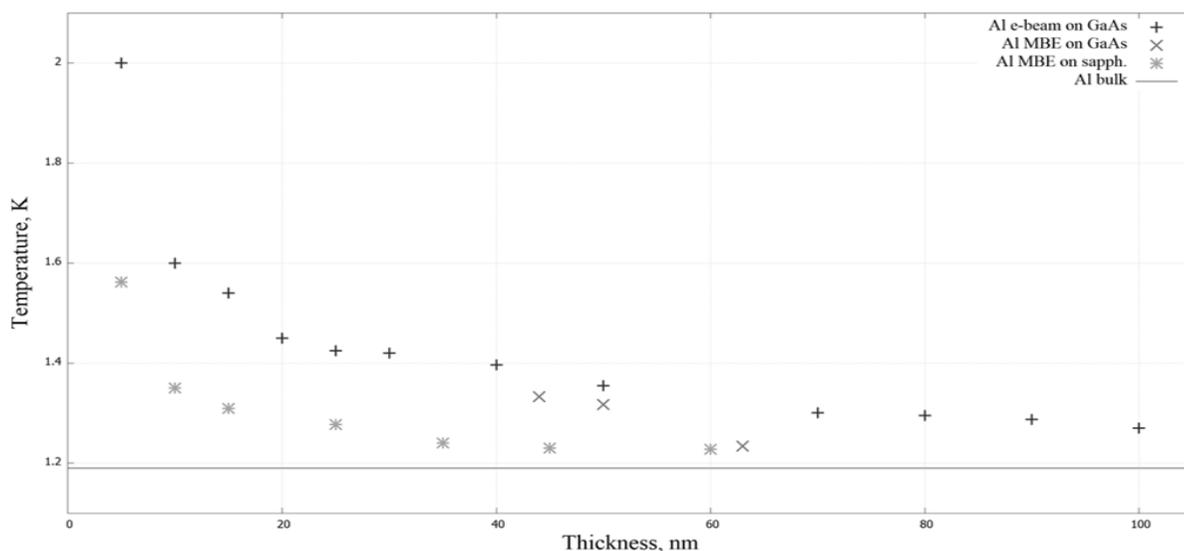


Рис. 2. Зависимость  $T_C$  от толщины пленок алюминия: (+) – напыленные пленки на галлий арсенид; (x) – эпитаксиальные пленки на галлий арсениде; (\*) – эпитаксиальные пленки на сапфире; непрерывная линия – температура  $T_C$  в объемном алюминии

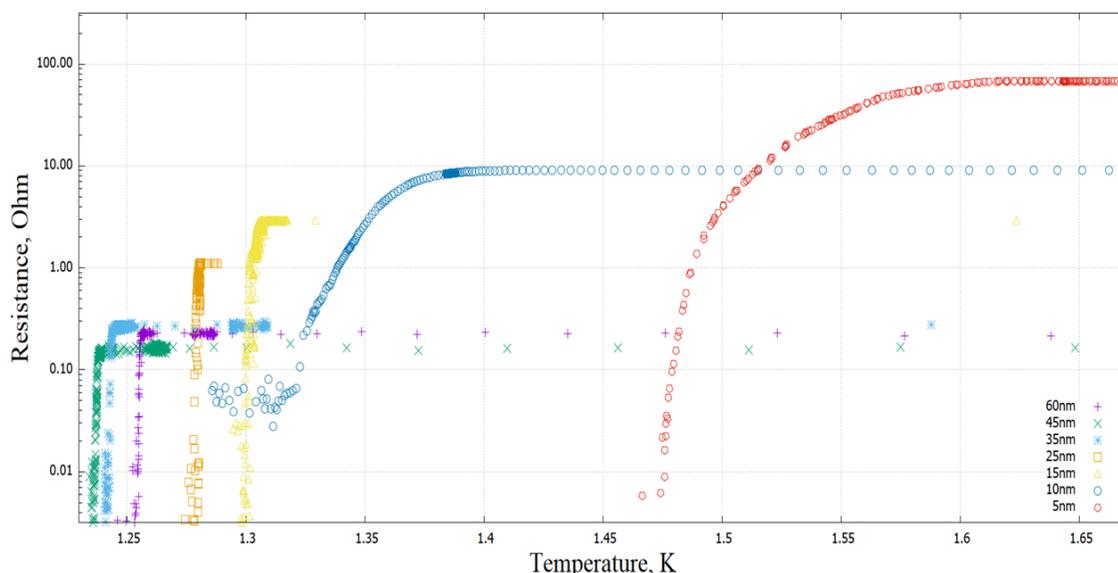


Рис. 3. Сравнение сверхпроводящих переходов эпитаксиальных пленок разной толщины, изготовленных на сапфировой подложке

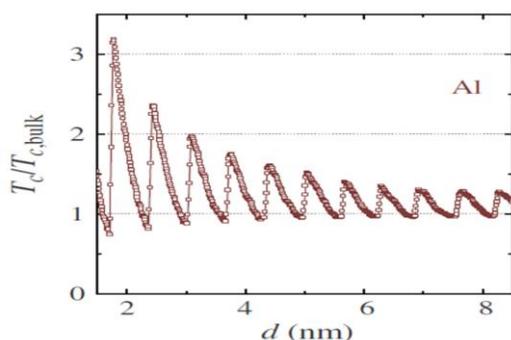


Рис. 4. Температура перехода  $T_C$  в единицах объемной критической температуры  $T_{C,bulk}$ ; зависимость от толщины пленки [10]

**Заключение.** Экспериментально исследованы высококачественные сверхпроводящие пленки алюминия, нанесенные на подложки GaAs и сапфира, изготовленные молекулярно-лучевой эпитаксией и электронным напылением. Мы обнаружили, что критическая температура сверхпроводящего перехода заметно возрастает с уменьшением толщины пленки. Эти результаты согласуются с более ранними наблюдениями для аналогичных образцов, изготовленных разными методами и на разных подложках, что свидетельствует об общем характере этого явления. Наблюдаемое явление рассматривается как проявление эффекта размерного квантования, который влияет как на плотность состояний, так и на электрон-фононное взаимодействие. Мы уверены, что результаты нашей работы послужат толчком к дальнейшим исследованиям в этой области.

*Работа выполнена при поддержке проекта «Зеркальные лаборатории» Национального исследовательского университета «Высшая школа экономики» и Башкирского государственного педагогического университета им. М. Акмуллы.*

#### Литература

1. Rubio G., Agraït N., Vieira S. Atomic-sized metallic contacts: Mechanical properties and electronic transport // *Phys. Rev. Lett.* 1996. V. 76. P. 2302–2305.
2. Costa-Krämer J.L., Garcia N., Olin H. Conductance quantization in bismuth nanowires at 4 K // *Phys. Rev. Lett.* 1997. V. 78. P. 4990–4993.
3. Shanenko A.A., Croitoru M.D., Peeters F.M. Quantum-size effects on  $T_C$  in superconducting nanofilms // *Europhys. Lett.* 2006. V. 76. P. 498.
4. Tinkham M. Effect of fluxoid quantization on transitions of superconducting films // *Phys. Rev.* 1963. V. 129, № 6. P. 2413–2412.
5. Abeles B., Cohen R.W., Cullen G.W. Enhancement of superconductivity in metal films // *Phys. Rev. Lett.* 1966. V. 17. P. 632.
6. Dynes R.C., Garno J.P., Rowell J.M. Two-dimensional electrical conductivity in quench-condensed metal films // *Phys. Rev. Lett.* 1978. V. 40. P. 479.
7. Shanenko A.A., Croitoru M.D., Peeters F.M. Oscillations of the superconducting temperature induced by quantum well states in thin metallic films: Numerical solution of the Bogoliubov–de Gennes equations // *Phys. Rev. B.* 2007. V. 75. P. 014519.
8. Shi-Wei Lin, Jau-Yang Wu, Sheng-Di Lin, Ming-Cheng Lo, Ming-Huei Lin, Chi-Te Liang. Characterization of single-crystalline aluminum thin film on (100) GaAs substrate // *Japanese J. of Applied Physics.* 2013. V. 52. P. 045801.

9. Arutyunov K.Yu., Zavialov V.V., Sedov E.A., Golokolenov I.A., Zarudneva A.A., Shein R.V., Trunkin I.N., Vasiliev A.L., Konstantinidis G., Stavrinidis A., Stavrinidis G., Croitoru, Shanenko A.A. Nanoarchitecture: Toward quantum-size tuning of superconductivity // *Phys. Status Solidi RRL*. 2019. V. 13. P. 1800317.

10. Chen Y., Shanenko A.A., Peeters F.M. Superconducting transition temperature of Pb nanofilms: Impact of thickness-dependent oscillations of the phonon-mediated electron-electron coupling // *Phys. Rev. B*. 2012. V. 85. P. 224517.

### References

1. Rubio G., Agraït N., Vieira S. Atomic-sized metallic contacts: Mechanical properties and electronic transport. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, vol. 76, pp. 2302–2305.

2. Costa-Krämer J.L., Garcia N., Olin H. Conductance quantization in bismuth nanowires at 4 K. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, vol. 78, pp. 4990–4993.

3. Shanenko A.A., Croitoru M.D., Peeters F.M. Quantum-size effects on  $T_c$  in superconducting nanofilms. *Europhys. Lett.*, 2006, vol. 76, p. 498.

4. Tinkham M. Effect of fluxoid quantization on transitions of superconducting films. *Phys. Rev.*, 1963, vol. 129, no. 6, pp. 2413–2412.

5. Abeles B., Cohen R.W., Cullen G.W. Enhancement of superconductivity in metal films. *Phys. Rev. Lett.*, 1966, vol. 17, p. 632.

6. Dynes R.C., Garno J.P., Rowell J.M. Two-dimensional electrical conductivity in quench-condensed metal films. *Phys. Rev. Lett.*, 1978, vol. 40, p. 479.

7. Shanenko A.A., Croitoru M.D., Peeters F.M. Oscillations of the superconducting temperature induced by quantum well states in thin metallic films: Numerical solution of the Bogoliubov–de Gennes equations. *Phys. Rev. B*, 2007, vol. 75, p. 014519.

8. Shi-Wei Lin, Jau-Yang Wu, Sheng-Di Lin1, Ming-Cheng Lo, Ming-Huei Lin, Chi-Te Liang. Characterization of single-crystalline aluminum thin film on (100) GaAs substrate. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2013, vol. 52, p. 045801.

9. Arutyunov K.Yu., Zavialov V.V., Sedov E.A., Golokolenov I.A., Zarudneva A.A., Shein R.V., Trunkin I.N., Vasiliev A.L., Konstantinidis G., Stavrinidis A., Stavrinidis G., Croitoru, Shanenko A.A. Nanoarchitecture: Toward quantum-size tuning of superconductivity. *Phys. Status Solidi RRL*, 2019, vol. 13, p. 1800317.

10. Chen Y., Shanenko A.A., Peeters F.M. Superconducting transition temperature of Pb nanofilms: Impact of thickness-dependent oscillations of the phonon-mediated electron-electron coupling. *Phys. Rev. B*, 2012, vol. 85, p. 224517.

## QUANTUM SIZE EFFECT IN SUPERCONDUCTORS

© E.A. Sedov, V.V. Zavialov, K.Yu. Arutyunov

<sup>1</sup> National Research University «Higher School of Economics»,  
20, ulitsa Myasnitskaya, 101000, Moscow, Russian Federation

<sup>2</sup> Kapitza Institute for Physical Problems, Russian Academy of Sciences,  
2, ulitsa Kosygina, 119334, Moscow, Russian Federation

In the middle of the last century, it was demonstrated that with a decrease in the size of superconducting structures, for example, the thickness of a thin film, its critical temperature  $T_C$  shifts by a certain amount. It increases in aluminum, tin, and indium, and decreases in mercury, niobium, and lead. However, there is still no generally accepted theory explaining this effect. In the 1970s, during the largest volume of research on this topic, V.L. Ginzburg assumed that the transition temperature of a sufficiently pure, monocrystalline superconductor film will be exactly the same as in a bulk body. However, this assumption has not yet been verified, and the question about the nature of this effect still remains open. For the study, we chose aluminum, due to the fact that the dependence of  $T_C$  of the film on its thickness is very predictable and increases with decreasing size. Despite a number of works on studying this dependence in aluminum, it is not always possible to accurately establish a correspondence with a theory. This is because characteristics vary from sample to sample, even made in the same batch. In our case, polycrystalline films were prepared, the crystallite sizes in which are comparable to the film thickness, and epitaxial samples with an atomically smooth surface. The films were fabricated using electron-beam deposition and molecular-beam epitaxy on various substrates. Within the BCS model, the critical temperature of the superconducting transition exponentially depends on the density of electronic states at the Fermi level  $N(E_F)$  and the electron-phonon interaction constant  $V$ :  $T_C \sim \exp(-1/[N(E_F)*V])$ . It is shown in this work that, due to QSE in thin superconducting films, both parameters  $N(E_F)$  and  $V$  change nonmonotonically with the sample thickness. This behaviour is a consequence of the form resonance theory. Presumably, the effect caused by disordering of crystallites, as well as by the surface or substrate, does not play a dominant role specifically in our case, since the aluminum films are of high quality, and their thicknesses go far beyond the limits of ultrathin objects, in which surface phenomena become of decisive importance. As a result of this study, the experimental and theoretical dependences of  $T_C$  on the thickness of films prepared by different methods on different substrates were obtained.

Key words: superconductivity, quantum size effects, QSE, molecular-beam epitaxy, gallium arsenide, sapphire.