

УДК 538.945

DOI: 10.31040/2222-8349-2024-0-1-55-60

КВАНТОВЫЙ РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ В ЧИСТЫХ ПЛЕНКАХ АЛЮМИНИЯ

© Д.Г. Безымянных, Н.Г. Пугач, Е.А. Седов, К.Ю. Арутюнов, Е.Г. Екомасов, Б.Г. Львов

В мире современных технологий наблюдается тенденция активного уменьшения размеров электронных устройств. При разработке новых технологий, использующих наноструктуры, часто акцентируется внимание на изучении квантовых эффектов, которые имеют критическое значение для таких конструкций. Например, одной из отличительных характеристик наноструктур является квантовая природа энергетического спектра электронов. Этот спектр становится дискретным в тех направлениях, где движение электронов ограничено. В зависимости от размерности системы структуры могут быть классифицированы как нанопленки, квантовые нити или квантовые точки. Свойства таких объектов могут существенно отличаться от тех, что характерны для макроскопических.

Метод уравнений Горькова является эффективным инструментом для анализа задач, связанных с моделью Бардина–Купера–Шриффера (БКШ). Например, с его помощью можно определить параметры сверхпроводящего состояния, критическую температуру и ток. Компоненты этих уравнений, такие как функции Грина, связаны с различными свойствами системы.

Из исследований, проведенных на ранних стадиях изучения сверхпроводимости, было выяснено, что критическая температура (T_c), при которой материал переходит в сверхпроводящее состояние, может существенно отличаться для тонких пленок по сравнению с объемными материалами. Интересно отметить, что уменьшение толщины пленки может как уменьшать (например, в ниобии), так и увеличивать (например, в алюминии) значение T_c . В этой работе исследуется эффект квантового размера в тонких алюминиевых пленках. Это открывает путь к разработке материалов с более высокой температурой перехода, что может сделать обслуживание сверхпроводящих систем менее сложным и дорогостоящим.

В данной работе была получена теоретическая зависимость критической температуры тонкой алюминиевой пленки от ее толщины. В качестве метода был выбран метод функций Грина, который не использовался ранее для вычисления данной зависимости и имеет больший потенциал по сравнению с другими методами теории сверхпроводимости, что открывает большие возможности для теоретических исследований в данной области. Авторы полагают, что данная работа способствует дальнейшим исследованиям квантовых размерных эффектов в низкоразмерных сверхпроводящих структурах.

Ключевые слова: квантовый размерный эффект, тонкие алюминиевые пленки, сверхпроводимость, арсенид галлия, сапфир, сверхпроводящий переход, низкоразмерные структуры, тонкие металлические пленки.

Введение. К середине 1960-х годов появилось множество теорий и исследований, направленных на поиск объяснений изменений величины критической температуры (T_c) в тонких пленках сверхпроводников. В одной из

работ, проведенной Марковитцем [1] на основе данных экспериментальных исследований [2], была предложена модель, рассматривающая изменение T_c как результат влияния двух параметров: общих свойств материала примесей

БЕЗЫМЯННЫХ Дмитрий Геннадьевич, Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики», e-mail: dgbezumyannykh@edu.hse.ru

ПУГАЧ Наталья Григорьевна – к.ф.-м.н., Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики», e-mail: npugach@hse.ru

СЕДОВ Егор Андреевич – к.ф.-м.н., Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики», e-mail: esedov@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

ЕКОМАСОВ Евгений Григорьевич – д.ф.-м.н., Башкирский государственный педагогический университет им. М. Акмуллы, e-mail: ekomasoveg@gmail.com

ЛЬВОВ Борис Глебович – д.т.н., Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики», e-mail: BLvov@hse.ru

и изменения анизотропии свойств материала из-за наличия распределения примесей в объеме пленки. Таким образом, изменение T_c оказывается суммой различных вкладов.

Оказалось, что изменение T_c в несколько раз [3, 4] не может быть обусловлено исключительно проблемами, связанными с качеством изготавливаемой пленки. Таким образом, теоретические исследования разделились на два направления. Первое, это изменение T_c из-за ограничения длины свободного пробега электронов границами зерен и, следовательно, квантование энергетических уровней зарядов [5, 6]. Второе, это воздействие поверхностных эффектов на изменение ширины запрещенной зоны и, следовательно, на T_c [7–9].

Первые попытки объяснить изменение T_c были предприняты Томсоном и Блаттом [5, 6], которые рассмотрели не только размерные эффекты, применимые к пленкам, но также применили свою модель к ультратонким пленкам толщиной около 1 нм. В их теории резонанса формы рассматривается случай, когда энергетические уровни сдвигаются относительно поверхности Ферми с изменением толщины пленки – чем тоньше пленка, тем больше амплитуда резонанса.

Второй тип работ начинается с предположений Гинзбурга [7–9] о наличии поверхностной сверхпроводимости, включающей эффекты, связанные с наличием шероховатости на поверхности наноструктур или дополнительного слоя (оксид, полупроводник, диэлектрик). В таких образцах формируются дополнительные очаги возбуждения электрон-фононного взаимодействия, воздействуя на сверхпроводящие свойства металла, включая T_c . Эти предположения быстро нашли отклик в научном сообществе. Киржниц [10] связывает увеличение T_c в пленках с наличием дополнительного параметра эффективного взаимодействия, возникающего из-за наличия несверхпроводящего слоя на поверхности пленки, между сверхпроводником и этим слоем соответственно. После работы Джозефсона [11], рассматривающей протекание сверхпроводящего тока между двумя сверхпроводниками, разделенными диэлектриком, появился ряд работ, в которых описывается увеличение T_c пленок за счет наличия диэлектрического слоя между гранулами в пленке.

В работе [12], например, предсказывается резкое увеличение температуры сверхпроводящего перехода в пленочных структурах сверх-

проводник – диэлектрик – сверхпроводник за счет фононного обмена через барьер между двумя электронами, находящимися по разные стороны барьера. Опираясь на модель Джозефсона, Парментер [13, 14] рассмотрел случай двумерной пленки, состоящей из отдельных гранул, при этом разделенных диэлектрическим слоем, изучая влияние поверхности каждой отдельной гранулы на итоговые свойства сверхпроводника. Большинство этих работ фокусируются на граничных условиях для таких систем, а изменения T_c , связанные с изменением фононной частоты, были описаны в работах МакМиллана [15] и Крезина [16] для сильно связанных и слабосвязанных систем соответственно. В первой работе автор связывает изменение T_c с энергией электрон-фононного взаимодействия и величиной кулоновского взаимодействия. Кроме того, учитывается влияние температуры Дебая.

Важным этапом стало стремление к синтезу двух теоретических моделей, что предприняли Крезин и Тавгер [17]. Они рассмотрели увеличение T_c в пленках в рамках двух моделей: размерного эффекта из-за уменьшения размеров образца и изменения электрон-фононного взаимодействия в результате этого. В данном случае отличие от предыдущих работ заключалось в том, что величина электрон-фононного спаривания суммировалась по всем подуровням, полученным в результате расщепления энергетических уровней. Таким образом, авторы предсказывают линейное увеличение T_c с уменьшением толщины пленки.

Из экспериментальных работ К.Ю. Арутюнова, Е.А. Седова [18] стало однозначно понятно, что изменение T_c слабо зависит от материала подложки, также наблюдалось, что зависимость T_c от толщины отлична от линейной. Высокое качество изготовления пленок также позволило полностью исключить вклад дефектов решетки. Также стоит отметить, что изменение T_c от толщины пленки изучалось ранее в работе [19], в которой были получены результаты схожие с экспериментальными данными, но рассеяние электронов на примесях в данном исследовании не учитывалось.

Методика расчета. В данной работе рассчитывалась зависимость критической температуры сверхпроводящего перехода T_c от толщины тонкой и чистой (без учета рассеяния электронов) пленки алюминия. В качестве метода

для исследования квантового-размерного эффекта был выбран метод функций Грина, которые находятся из уравнений Горькова в рамках микроскопической модели сверхпроводимости БКШ. Для данной задачи о системе, ограниченной в пространстве, уравнения Горькова имеют следующий вид:

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

здесь $\Delta(z)$ – величина энергетической щели, $G_\omega(r, r')$ и $F_\omega(r, r')$ – нормальная и аномальная функция Грина соответственно в представлении Мацубары, ω – Мацубаровская частота.

Решение системы (1) необходимо подставить в уравнение самосогласования:

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

Так как $\Delta(r) \sim F_\omega(r, r')$, то можно сократить на Δ и получить уравнение вида:

$$f(T, D) = \frac{\hbar^2 \pi^2 \xi}{2m \lambda} = \text{const}. \quad (3)$$

В данном уравнении ξ – длина когерентности, λ – константа электрон-фононного взаимодействия, \hbar – постоянная планка, m – масса электрона, T – температура, D – толщина пленки. Величина $\frac{\hbar^2 \pi^2 \xi}{2m \lambda}$ не зависит от толщины и температуры образца, а является постоянной для данного материала.

Численная реализация. Из математической модели следует, что у нас есть уравнение $f(T, D) = C$, где C – константа. Функцию f необходимо построить на сетке $[T, D]$. Тогда мы получим поверхность, которую пересекает плоскость $f = C$, параллельная плоскости (T, D) . Точки пересечения плоскостей f и C будут решением данного уравнения. Данная задача требует задания очень маленького шага сеточной функции, чтобы избежать ошибок и неточностей при расчете. Константа C может быть посчитана при фиксированной температуре сверхпроводящего перехода для объемного образца алюминия и стремлении толщины образца к бесконечности.

Результаты. Из численного моделирования данной задачи были получены графики зависимости критической температуры T_c , отнесенной к критической температуре объемного алюминия T_{c-bulk} от толщины пленки. Мы рассмотрели 2 случая: номинальной энергии Ферми, имеющей табличное значение для алюминия $\epsilon_{F1} = 11.7$ eV, и эффективной энергии Ферми $\epsilon_{F2} = 0.9$ eV.

Для обоих рассмотренных случаев явно видна тенденция увеличения T_c с уменьшением толщины образца, что согласуется с экспериментальными данными [20].

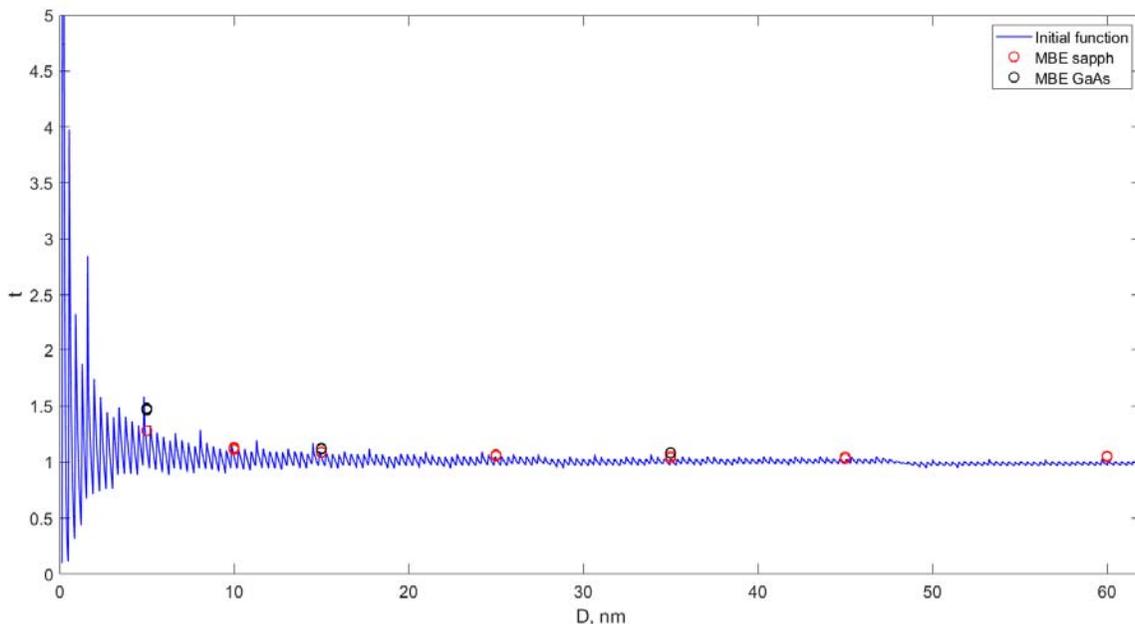


Рис. 1. Расчетная зависимость (осциллирующая сплошная линия) $t = T_c / T_{c-bulk}$ от толщины пленок алюминия для энергии Ферми $\epsilon_{F1} = 11.7$ eV. В качестве экспериментальных точек (кружочки) были взяты данные по пленкам, выращенным на подложке из сапфира (MBE sapph) и подложках из арсенида галлия (MBE GaAs) [18, 20]

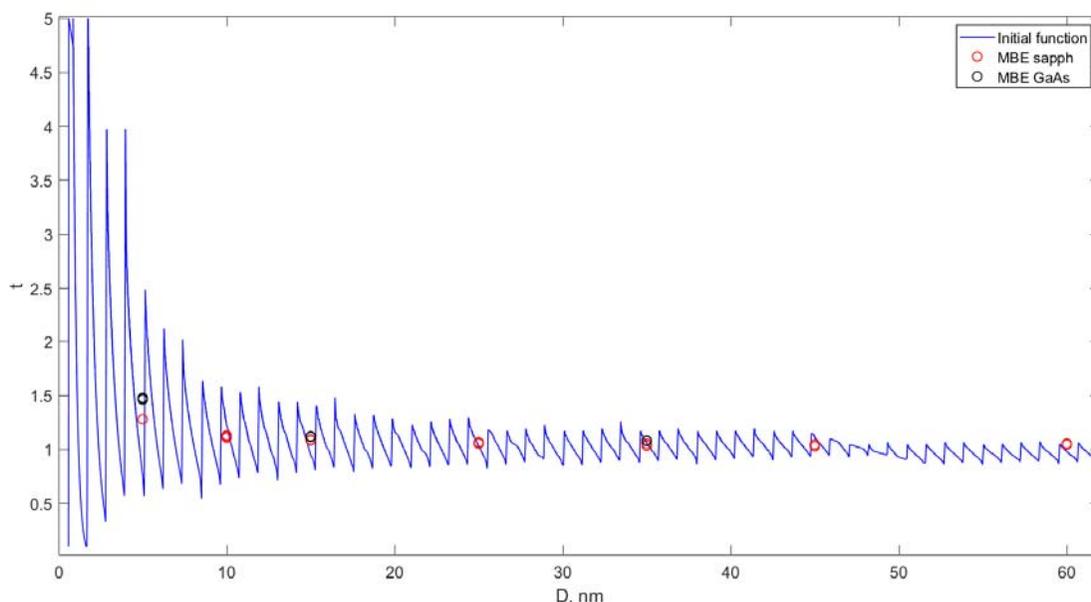


Рис. 2. Расчетная зависимость (осциллирующая сплошная линия) $T_c / T_{c\text{-bulk}}$ от толщины пленок алюминия для эффективной энергии Ферми $\epsilon_{F2} = 0.9$ eV. В качестве экспериментальных точек (кружочки) были взяты данные по пленкам, выращенным на подложке из сапфира (MBE sapph) и подложках из арсенида галлия (MBE GaAs) [18, 20]

Результаты и обсуждение. Расчетная зависимость имеет осциллирующий характер. Квазиимпульс электронов квантуется в направлении, перпендикулярном плоскости пленки в зависимости от ее толщины. В результате уменьшения размеров образца происходит смещение энергетических уровней носителей заряда (электронов) и колебания их плотности состояний вблизи уровня Ферми, а вследствие этого – скачкообразное изменение электрических характеристик. Период осциллирующей зависимости пропорционален длине волны де Бройля $\frac{\pi}{k_F}$. Периодические модуляции расчетной осциллирующей зависимости, например при $D \sim 48$ нм (рис. 2), связаны с величиной квазиимпульса электронов на поверхности Ферми, участвующих в сверхпроводящем спаривании.

Величина энергии и квазиимпульса Ферми, получающаяся из простых моделей (свободных электронов или полуэллиптической зоны), не соответствует экспериментальным данным фотоэлектронной спектроскопии. Чтобы добиться соответствия, нужно использовать эффективные значения [19]. Это цена использования простых моделей, в частности БКШ, основанной на представлении квазисвободных электронов. Следовательно, для того, чтобы расчет не противоречил эксперименту, необходимо выбрать эффективную энергию ферми, которая оказывается при-

мерно на порядок меньше полученной из модели свободных электронов ($\epsilon_{F1} = 11.7$ eV). Из условий квантования следует, что при выборе эффективной энергии Ферми квазиимпульс Ферми уменьшается, график должен растянуться вдоль оси абсцисс, это видно из расчета (рис. 2). Т.е. рост T_c при уменьшении толщины пленки наступает при больших ее толщинах. При сравнении теоретических зависимостей (рис. 1) и (рис. 2), можно сделать вывод, что модель, в которой используется эффективная ϵ_{F2} лучше аппроксимирует экспериментальные данные.

Таким образом в данной работе была получена зависимость критической температуры тонких алюминиевых пленок от их толщины с помощью функционального теоретического метода функций Грина. Правильность данного подхода подтверждается тем, что результат расчета согласуется с экспериментальными данными и теоретическими, полученными ранее. Теория квантового размерного эффекта объясняет тот факт, что критическая температура алюминиевой пленки T_c значительно увеличивается при уменьшении толщины пленки.

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

Литература

1. Markowitz D., Kadanoff L.P. Effect of Impurities upon Critical Temperature of Anisotropic Superconductors // *Physical Review*. 1963. V. 131. № 2. P. 563–575.
2. Seraphim D. P., Chiou C. and Quinn D.J. The critical temperature of superconducting alloys // *Acta metallurgica*. 1961. № 9. P. 861–869.
3. Khukhareva I.S. The Superconducting Properties of Thin Aluminum Films // *Soviet Physics JETP*. 1963. V. 16. № 4. P. 828–832.
4. Giaever I., Megerle K. Study of Superconductors by Electron Tunneling // *Physical Review*. 1961. V. 122. № 4. P. 1101–1111.
5. Thomson C.J., Blatt J.M. Shape Resonances in Superconductors – Simplified Theory // *Physics Letters*. 1963. V. 5. № 1. P. 6–9.
6. Blatt J.M., Thomson C.J. Shape Resonances in Superconducting Thin Films // *Physical Review Letter*. 1963. V. 10. № 8. P. 332–334.
7. Ginzburg V.L. Concerning Surface Superconductivity // *JETP*. 1964. № 47. P. 2318–2320.
8. Ginzburg V.L. On Surface Superconductivity // *Physics Letters*. 1964. V. 13. № 2. P. 101–102.
9. Ginzburg V.L., Kirzhnits D.A. On the Superconductivity of Electrons at the Surface Levels // *JETP*. 1964. № 46. P. 397–398.
10. Kirzhnits D.A., Maksimov E.G. Critical Temperature of Thin Superconducting Films // *JETP Pis'ma*. 1965. № 2. P. 442–445.
11. Josephson B.D. Supercurrents through barriers // *Advances in Physics*. 1965. V. 14. № 56. P. 419–451.
12. Cohen M.H., Douglass D. H. Superconductive pairing across electron barriers // *Physical Review Letters*. 1967. V. 19. № 3. P. 118–121.
13. Parmenter R.H. Isospin Formulation of the Theory of a Granular Superconductor // *Physical Review*. 1967. № 154. 353 p.
14. Parmenter R.H. Characteristic Parameters of a Granular Superconductor // *Physical Review*. 1968. V. 167. № 2. P. 387–382.
15. McMillan W.L. Transition Temperature of Strong-Coupled Superconductors // *Physical Review*. 1967. V. 167. № 2. P. 331–344.
16. Kresin V.Z. On the Change of the Transition Temperature of Ordinary Superconductors // *Journal of Low Temperature Physics*. 1971. V. 5. № 5. P. 565–574.
17. Kresin V.Z., Tavger B.A. Superconducting transition temperature of a thin film // *JETP*. 1966. V. 23, № 6. P. 1124–1130.
18. Arutyunov K.Yu. et al., *Phys. Stat. Sol. RRL*. 2019. № 13. P. 1800317
19. Shanenko A.A., Croitoru M.D., Peeters F. M. (2007), Quantum-size effects on Tc in superconducting nanofilms. *EPL (Europhysics Letters)*. 76. 498. 10.1209 // epl // i2006-10274-6.
20. Седов Е.А., Завьялов В.В., Арутюнов К.Ю. Квантовый размерный эффект в сверхпроводниках // *Известия Уфимского научного центра РАН*. 2021. № 1. С. 39–43 [Sedov E.A., Zavyalov V.V., Arutyunov K.Yu. Quantum size effect in superconductors // *News of the Ufa Scientific Center of the Russian Academy of Sciences*. 2021. № 1. P. 39–43]

QUANTUM SIZE EFFECT IN CLEAN ALUMINUM FILMS

© D.G. Bezmyannykh¹, N.G. Pugach¹, E.A. Sedov¹, K.Yu. Arutyunov^{1,2}, E.G. Ekomasov³, B.G. Lvov¹

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

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

³Akmullah Bashkir State Pedagogical University,
3a, ulitsa Oktybrskoy revolyutsii, 450008, Ufa, Russian Federation

In the modern world, there's a notable trend towards the active miniaturization of electronic devices. With technological advances enabling the manipulation of nanostructures, there's an increasing focus on exploring quantum effects pivotal to such designs.

One distinguishing feature of nanostructures is the quantum nature of the electron's energy spectrum. This spectrum becomes discrete in directions where electrons move. Depending on the direction of this confinement, structures can be categorized as nanoplates, quantum wires, or quantum dots. The properties of such structures can significantly differ from those observed in large-scale systems.

When discussing superconductivity, particular emphasis is placed on its macroscopic quantum properties. The influence on electronic wave functions is reflected in the characteristics of the superconducting state on broader scales. The Bardeen-Cooper-Schrieffer (BCS) theory is frequently utilized to analyze these nanostructures.

The Gor'kov equations method serves as a potent tool for tasks related to the BCS theory. For instance, it can determine the parameters of the superconducting state, critical temperature, and current. Components of these equations, like Green's functions, are associated with various system properties.

Research in the early stages of superconductivity studies revealed that the critical temperature (T_c) – the temperature at which a material transitions to a superconducting state – can differ significantly between thin films and bulk materials. Intriguingly, reducing the film's thickness can both decrease (e.g., in niobium) and increase (e.g., in aluminum) the T_c value. This study delves into the quantum size effect in thin aluminum films, paving the way for materials with higher transition temperatures. Such advancements can simplify and make the maintenance of superconducting systems more cost-effective.

In this study, a theoretical relationship between the critical temperature of a thin aluminum film and its thickness was derived. The Green's function method was chosen, which hadn't been previously employed for this computation. This approach offers greater potential compared to other superconductivity theory methods, presenting extensive avenues for theoretical exploration in this domain. The authors are confident that this work will contribute to further research on quantum dimensional effects in low-dimensional superconducting structures.

Keywords: quantum Size Effect, thin aluminum films, superconductivity, gallium arsenide, sapphire, superconducting transition, low-dimensional structures, thin metal films.