Физика низких температур, 1996, т. 22, № 4, с. 359–363 УДК 538.945

Пленки Mo и сверхрешетки Mo/Si : сопоставление сверхпроводящих и кинетических характеристик

Н. Я. Фогель [1], Е. И. Бухштаб [2], О. А. Корецкая [1], А. С. Похила [1], В. Г. Черкасова [1], С. А. Юлин [3]

[1] *Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины, Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47*
E-mail:fogel@ilt.kharkov.ua

[2] *Department of Physics, Solid State Institute, Technion, 32100 Haifa, Israel*
E-mail:phr32eb@technion.technion.ac.il

[3] *Харьковский политехнический университет, Украина, 310002, г. Харьков, ул. Фрунзе, 21*
E-mail:fedorenko@polit.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 6 октября 1995 г.

Приведены результаты сравнительных измерений зависимостей ряда сверхпроводящих и кинетических характеристик от толщины слоя на пленках молибдена и сверхрешетках Mo/Si на их основе. Обнаружено, что на единичных пленках отсутствуют размерные осцилляции, наблюдающиеся на свехрешетках Mo/Si. Из сопоставления данных на пленках и сверхрешетках сделано заключение, что осцилляционные эффекты, наблюдающиеся на сверхрешетках Mo/Si, нельзя объяснить в терминах обычного квантового размерного эффекта. Этот эффект отсутствует на пленках из-за высокой степени разупорядочения слоев Mo, в которых длины свободного пробега электронов намного меньше, чем толщина пленок. Размерные осцилляции, связанные с пространственным квантованием спектра носителей, не должны наблюдаться и на сверхрешетках, в которых слои молибдена разупорядочены столь же сильно, как и в единичных пленках. Объяснение осцилляционных эффектов на сверхрешетках следует, по-видимому, искать, основываясь на туннельных свойствах полупроводниковых барьеров, разделяющих металлические слои.

Приведено результати порівняльних вимірювань залежностей ряду надпровідних та кінетичних характеристик від товщини шару на плівках молібдену та на надгратках Mo/Si на їх основі. Виявлено, що на поодиноких плівках відсутні розмірні осциляції, що спостерігаються на надгратках Mo/Si. Із співставлення даних на плівках та надгратках зроблено висновок, що осциляційні ефекти, що спостерігаються на надгратках Mo/Si, неможливо пояснити в термінах звичайного квантового розмірного ефекту. Цей ефект відсутній на плівках через високий рівень розупорядкування шарів Mo, в яких довжини вільного пробігу електронів набагато менші, ніж товщина плівок. Розмірні осциляції, що пов'язані із просторовим квантуванням спектру носіїв, не повинні спостерігатися і на надгратках, в яких шари молібдену розупорядковані настільки ж сильно, як і в одиночних плівках. Пояснення осциляційних ефектів на надгратках слід шукати, базуючись на тунельних властивостях напівпровідникових бар'єрів, що розділяють шари металів.

В недавних экспериментах [1] были обнаружены размерные осцилляции ряда сверхпроводящих и кинетических характеристик на сверхрешетках Mo/Si. Было установлено, что на серии сверхрешеток с постоянной толщиной кремниевой прослойки (s = 25 Å) и переменными значениями толщины металлических слоев (d = 8–200 Å) температура сверхпроводящего перехода T_c, производная перпендикулярного критического поля по температуре $dH_{c\perp}/dT\big|_{T_c}$, удельное сопротивление ρ_n и отношение ρ_{300}/ρ_n, характеризующие проводимость сверхрешеток вдоль слоев, осциллируют с изменением толщины металлических слоев d с периодом Δd = 35 Å. Положение экстремумов на всех осцилляционных зависимостях совпадают. Наряду с перечисленными выше осцилляциями на той же серии сверхрешеток Mo/Si обнаружены гигантские осцилляции коэффициента анизотропии γ [2], которые коррелируют с осцилляциями всех упомянутых выше параметров. Коэффициент анизотропии γ, определяемый экспериментально из отношения производных параллельного и перпендикулярного критических полей по температуре

$$\gamma = \frac{dH_{c\parallel}/dT\big|_{T_c}}{dH_{c\perp}/dT\big|_{T_c}},$$

характеризует силу джозефсоновской связи между слоями и соответственно прозрачность барьеров

© Н. Я. Фогель, Е. И. Бухштаб, О. А. Корецкая, А. С. Похила, В. Г. Черкасова, С. А. Юлин, 1996

между металлическими слоями и поперечное сопротивление сверхрешетки.

Следует отметить, что осцилляции отношения ρ_{300}/ρ_n на сверхрешетках, связанного с продольной компонентой проводимости, качественно сходны с осцилляциями этого отношения, которые наблюдались на единичных пленках металлов и полуметаллов [3–5] в интервале толщин, в котором реализуется квантовый размерный эффект (КРЭ) [6,7]. Такое же сходство обнаруживается и между осцилляциями T_c на сверхрешетках Mo/Si и на пленках Sn. Однако объяснить осцилляционные эффекты на сверхрешетках Mo/Si в терминах обычного КРЭ, по-видимому, невозможно из-за сильного разупорядочения слоев молибдена в слоистых образцах. Согласно данным работы [1], коэффициент диффузии электронов D_e в слоях молибдена, полученный из измерений критических полей с помощью формулы $D_e = -4kc/(\pi e\, dH_{c\perp}/dT)$, не превышает $1\text{см}^2/\text{с}$. Это означает, что длина свободного пробега носителей близка к межатомному расстоянию, а транспортное время релаксации τ_{tr} должно быть порядка 10^{-15} с. Эта оценка согласуется с величиной $\tau_{tr} = 0{,}9 \cdot 10^{-15}$ с, полученной из сопоставления экспериментальной зависимости $T_c(d)$ на сверхрешетках Mo/Si [8] с теорией Финкельштейна [9,10], рассматривающей влияние слабой локализации и кулоновского взаимодействия на T_c в двухмерных разупорядоченных металлах.

Для реализации КРЭ, обусловленного пространственным квантованием спектра носителей, требуется выполнение ряда условий. Уширение квантовых уровней энергии вследствие температурного размытия и столкновений не должно превышать расстояние между состояниями с наименьшей энергией в соседних подзонах:

$$\varepsilon_{n+1} - \varepsilon_n >> kT\,,\quad \hbar/\tau_{tr}\,. \qquad (1)$$

Здесь n — номер квантовой подзоны вблизи уровня Ферми.

Согласно нашим экспериментальным данным, $\hbar/\tau_{tr} \sim 10^{-12}$ эрг, а $kT \sim 10^{-15}$ эрг при низких температурах. Расстояние между соседними подзонами составляет [7]

$$\Delta\varepsilon_{n,\,n+1} = \frac{\pi^2\hbar^2}{2m_z d^2}\left(2n+1\right)\,. \qquad (2)$$

Здесь m_z — эффективная масса электрона в направлении поперечном пленке. Оценки по формуле (2) показывают, что если m_z не очень сильно отличается от массы свободного электрона m_0, то расстояние между соседними подзонами примерно на два порядка меньше, чем величина $\hbar/\tau_{tr} \sim 10^{-12}$ эрг. Таким образом, в случае сверхрешеток Mo/Si, исследованных в [1], второе из неравенств (1) явно нарушается и, казалось бы, обычный квантовый размерный эффект не должен наблюдаться.

Очевидно, что прямые экспериментальные доказательства лучше, чем любые умозаключения. Поэтому в настоящей работе на единичных пленках молибдена исследованы зависимости от толщины тех же кинетических и сверхпроводящих характеристик, что и на сверхрешетках Mo/Si. Согласно теории [11], рассматривающей T_c сверхрешеток S/I-типа (S — сверхпроводник, I — полупроводник или диэлектрик) в приближении среднего поля, критическая температура многослойных образцов не должна отличаться от T_c сверхпроводящих слоев, на основе которых сконструирована сверхрешетка. Исходя из данных теории [11] можно предположить, что, если причиной осцилляций в сверхрешетках является КРЭ, такие же осцилляции упомянутых выше параметров должны наблюдаться и на единичных пленках. Исследования, проведенные в настоящей работе, показали, что на единичных пленках осцилляционные эффекты практически не наблюдаются. Из этого факта следует, что объяснение осцилляционных эффектов на сверхрешетках Mo/Si в терминах обычного КРЭ невозможно и, по-видимому, при интерпретации этого явления следует учитывать регулярную слоистую структуру и наличие джозефсоновской связи между слоями.

Толщина пленок Mo варьировалась в интервале d = 20–100 Å. В каждой серии пленок с фиксированным значением d было шесть образцов. Все образцы были покрыты как сверху, так и со стороны подложки слоями кремния толщиной 100 Å, т.е. представляли собой сэндвичи Si/Mo/Si. Нанесение кремния преследовало двоякую цель. С одной стороны, слои Si служили защитными покрытиями, которые не давали пленкам деградировать от соприкосновения с атмосферой. С другой стороны, на пленках были обеспечены те же граничные условия, которые существуют на стыке слоев в сверхрешетках Mo/Si. Методика приготовления сэндвичей Si/Mo/Si и методика измерений не отличаются от методик, подробно описанных в работе [1] для сверхрешеток Mo/Si. Измерения проводились на двух–трех образцах пленок с одинаковым значением d. Слои кремния во всех образцах аморфны. Слои Mo аморфны при $d < 50$ Å; при $d > 50$ Å молибден имеет мелкокристаллическую структуру со средним размером зерна 30 Å [1,2,8].

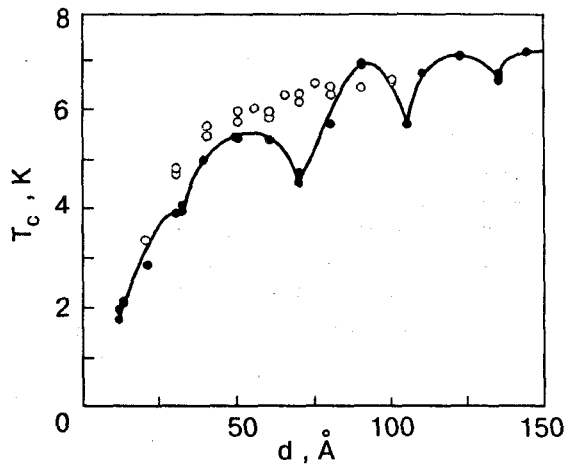

Рис. 1. Зависимости T_c от толщины металлического слоя для сверхрешеток Mo/Si (●) и единичных пленок Mo (○) (образцов Si/Mo/Si).

На рис. 1 представлены зависимости температуры сверхпроводящего перехода от толщины слоя Mo для сверхрешеток Mo/Si и сэндвичей Si/Mo/Si. Из этого рисунка следует, что в отличие от сверхрешеток на пленках молибдена зависимость $T_c(d)$ имеет монотонный характер. Следует отметить, что $T_c(d)$ на пленках близка к огибающей зависимости $T_c(d)$ на сверхрешетках. Наличие квантовых осцилляций, характерных для сверхрешеток, приводит к понижению величины T_c в минимумах относительно его значений на единичных пленках.

Точно также отношение сопротивлений ρ_{300}/ρ_n на пленках монотонно увеличивается с ростом d. Сравнение зависимостей ρ_{300}/ρ_n от d для сверхрешеток и пленок показано на рис. 2. Зависимость ρ_{300}/ρ_n от d на пленках также близка к огибающей для соответствующей кривой, полученной на сверхрешетках Mo/Si. В работе [8] было показано, что на сверхрешетках удельное сопротивление слоев молибдена, соответствующее плавной части зависимости ρ_{300}/ρ_n, одинаково для всех образцов с любыми значениями d и составляет 230 мкОм·см. Для единичных пленок разных толщин получено такое же значение ρ_n. Это означает, что степень разупорядочения структуры в пленках такая же, как в слоях Mo в сверхрешетках, а длины свободного пробега электронов соответственно составляют не более нескольких межатомных расстояний [1,8]. Столь малые длины пробега, которые оказываются для образцов с $d > 20$ Å существенно меньшими, чем толщина слоев металла, также свидетельствуют в пользу того, что КРЭ не должен наблюдаться.

Сравнение величин производных $dH_{c\perp}/dT$ для пленок и сверхрешеток на их основе приведено на рис. 3. Зависимость $dH_{c\perp}/dT$ от толщины на единичных пленках обнаруживает заметный разброс, однако вряд ли можно назвать эту зависимость осцилляционной. В случае пленок значения $dH_{c\perp}/dT$, как правило, меньше, чем на сверхрешетках с теми же значениями толщин Mo, и наблюдается тенденция к понижению величин критического поля с увеличением d. Известно [12], что на единичных пленках некоторых металлов T_c зависит от толщины полупроводникового покрытия. В этих исследованиях толщина защитных слоев Si на пленках Mo (100 Å) намного превышала толщину прослоек кремния в сверхрешетках (25 Å). Чтобы исключить возможное влияние этого эффекта, были приготовлены пленки Mo толщи-

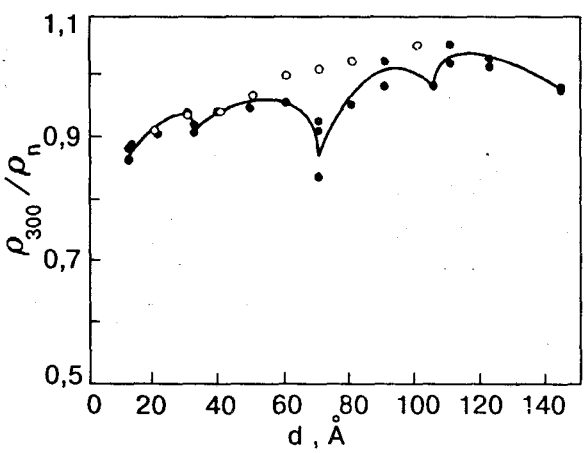

Рис. 2. Зависимости отношения сопротивления ρ_{300}/ρ_n от толщины металлического слоя для сверхрешеток Mo/Si (●) и единичных пленок Mo (○).

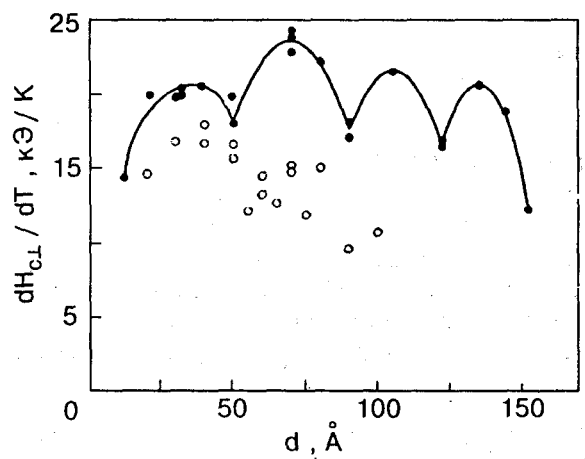

Рис. 3. Зависимости производной перпендикулярного критического поля по температуре от толщины металлического слоя для сверхрешеток Mo/Si (●) и единичных пленок Mo (○).

ной 60 Å, соответствующей окрестности максимума T_c на сверхрешетках, с защитными слоями кремния 25 Å. Оказалось, что T_c этих пленок несколько выше, чем на сэндвичах Si/Mo/Si с толщинами Si 100 Å, а значения $dH_{c\perp}/dT$ на образцах с разной толщиной покрытия практически не отличаются. Таким образом, очевидно, что отличие между параметрами пленок и сверхрешеток нельзя отнести за счет разных толщин Si в сверхрешетках и в сэндвичах Si/Mo/Si.

Основной вывод, который следует из приведенных экспериментальных данных, заключается в том, что квантовые размерные осцилляции на единичных сильно разупорядоченных пленках Mo практически не наблюдаются. Таким образом, отсутствие квантового размерного эффекта из-за очень малых длин пробега электронов, при которых нарушается условие $\Delta\varepsilon >> \hbar/\tau_{tr}$, необходимое для наблюдения обычного КРЭ, подтверждено экспериментально. К сожалению, данные о КРЭ на более совершенных пленках Mo, которые могли бы позволить сопоставить период осцилляций на единичных пленках и на сверхрешетках, в литературе отсутствуют.

Из сопоставления результатов на исследованных единичных пленках и на сверхрешетках следует важное заключение о том, что квантовые размерные осцилляции, наблюдаемые на сверхрешетках Mo/Si, являются уникальным свойством многослойных образцов. Их объяснение, по-видимому, следует искать, основываясь на туннельных свойствах полупроводниковых барьеров, разделяющих металлические слои, в особенности в связи с данными об осцилляциях параметра анизотропии γ, свидетельствующими о наличии осцилляций туннельного сопротивления при изменении d при сохранении постоянного значения толщины кремниевых прослоек s.

На первый взгляд, уменьшение T_c на сверхрешетках в области минимумов T_c по сравнению с критической температурой пленок кажется парадоксальным, поскольку из экспериментов, описанных в [2], следует, что минимумам T_c соответствует минимальная сила джозефсоновской связи или отсутствие таковой из-за малой прозрачности барьеров между металлическими слоями. Казалось бы, в этом пределе T_c сверхрешетки должно стремиться к T_c единичной пленки. В этой связи можно упомянуть также эксперименты Руджиеро, Барби и Бизли на сверхрешетках Nb/Ge [13]. В работе [13] обнаружено, что с увеличением толщины слоя Ge джозефсоновская связь ослабляется и уменьшение связи между слоями приводит к понижению T_c. Таким образом, в этих экспериментах обнаружена та же тенденция, что в наших экспериментах на сверхрешетках Mo/Si: ослабление связи приводит к понижению T_c. Этот результат не соответствует выводам теории [11] и, по-видимому, свидетельствует о том, что при расчете T_c сверхрешеток приближения среднего поля не достаточно. С другой стороны, следует учитывать, что на сверхрешетках Mo/Si наблюдаются также осцилляции нормального сопротивления и, следовательно, сопротивления на квадрат $R_\square = \rho_n/d$, которые находятся в противофазе с осцилляциями T_c (удельное сопротивление ρ_n и отношение ρ_{300}/ρ_n осциллируют в противофазе). Одного факта наличия осцилляций сопротивления, независимо от природы этих осцилляций, достаточно для объяснения осцилляций критической температуры в случае, если система двухмерна.

Свидетельства двухмерного поведения сверхрешеток Mo/Si при низких температурах были получены в двух типах экспериментов. При исследовании температурных зависимостей сопротивления и магнитосопротивления на сверхрешетках Mo/Si [14] были определены квантовые поправки к сопротивлению, связанные с эффектами слабой локализации и электрон-электронного взаимодействия. Поведение квантовых поправок при $T < 5T_c$ на всех сверхрешетках оказалось двухмерным [14]. В случае сильного разупорядочения в двухмерных системах слабая локализация электронов и кулоновское взаимодействие должны сказываться и на поведении критической температуры. Этот эффект, теоретически предсказанный в работах [9,10], был обнаружен экспериментально на сверхрешетках Mo/Si [8], а также на других разупорядоченных двухмерных системах (пленки Mo–Ge [15], пленки W–Re [16], сверхрешетки NbTi/Ge [17]). Согласно [9,10], T_c должно понижаться по мере увеличения $R_\square$. Результаты экспериментов [8] оказались в хорошем качественном и количественном соответствии с теорией [10]. Основываясь на зависимости $T_c(R_\square)$, можно утверждать, что локальное увеличение $R_\square$, соответствующее максимуму на зависимости $R_\square(d)$, должно приводить к понижению T_c в окрестности соответствующего значения d, а уменьшение $R_\square$ — к повышению T_c. В соответствии с этими соображениями, $R_\square$ и T_c действительно осциллируют в противофазе. Таким образом, осцилляции T_c могут быть объяснены как следствие осцилляций сопротивления. Точно так же, как уже упоминалось в работе [1], следствием осцилляций сопротивления могут быть и осцилляции производной критического поля $dH_{c\perp}/dT$. Возможно, объяснение ос-

цилляций сопротивления в многослойной системе приведет к пониманию происхождения всех осцилляционных эффектов, наблюдающихся на сверхрешетках Mo/Si.

В заключение авторы выражают благодарность за ценные дискуссии В. М. Гвоздикову, Л. Ю. Горелику, А. И. Копелиовичу, А. М. Косевичу и А. А. Слуцкину. Н. Ф. и В. Ч. признательны за частичную поддержку Международному научному фонду (грант No U9M 000).

1. Е. И. Бухштаб, В. Ю. Каширин, Н. Я. Фогель, В. Г. Черкасова, В. В. Кондратенко, А. И. Федоренко, С. А. Юлин, *ФНТ* **19**, 704 (1993) [*Low Temp. Phys.* **19**, 506 (1993)].
2. N. Ya. Fogel, O. G. Turutanov, A. S. Sidorenco, and E. I. Buchstab (to be publ.).
3. Ю. Ф. Комник, Е. И. Бухштаб, *Письма в ЖЭТФ* **6**, 536 (1967) [*JETP Lett.* **6**, 58 (1967)].
4. Ю. Ф. Комник, Е. И. Бухштаб, К. М. Маньковский, *ЖЭТФ* **57**, 1495 (1969) [*Sov. Phys. JETP* **30**, 807 (1970)].
5. О. Р. Филатов, И. А. Карпович, *ФТТ* **11**, 1637 (1969) [*Sov. Phys. Solid State* **11**, 1328 (1969)].
6. И. М. Лифшиц, А. М. Косевич, *Изв. АН СССР* **19**, 395 (1955).
7. Ю. Ф. Комник, *Физика металлических пленок*, Атомиздат, Москва (1979).
8. N. Ya. Fogel, E. I. Buchstab, A. S. Pokhila, A. I. Erenburg, and V. Langer, *Phys. Rev.* **B53**, No 1, (1996).
9. А. М. Финкельштейн, *Письма в ЖЭТФ* **45**, 37 (1987) [*JETP Lett.* **45**, 28 (1987)].
10. A. M. Finkel'stein, *Physica* **B197**, 636 (1994).
11. В. М. Гвоздиков, *ФНТ* **15**, 639 (1989) [*Sov. J. Low Temp. Phys.* **15**, 358 (1989)].
12. К. А. Осипов, А. Ф. Орлов, В. П. Дмитриев, А. К. Милай, *ФТТ* **19**, 1226 (1977).
13. S. T. Ruggiero, T. W. Barbee, and M. R. Beasley, *Phys. Rev.* **B26**, 4894 (1982).
14. E. I. Buchstab, A. V. Butenko, N. Ya. Fogel, V. G. Cherkasova and R. L. Rosenbaum, *Phys. Rev.* **B50**, 10063 (1994).
15. J. M. Graybeal and M. R. Beasley, *Phys. Rev.* **B29**, 4167 (1984).
16. H. Raffy, L. R. Laibowitz, P. Chaudhari, and S. Maekawa, *Phys. Rev.* **B28**, 6607 (1983).
17. B. Y. Jin, Y. H. Shen, H. Q. Yang, H. R. Wong, J. E. Hilliard, and J. B. Ketterson, *J. Appl. Phys.* **57**, 2543 (1985).

Mo films and Mo/Si superlattices: comparison of superconducting and kinetic parameters

N. Ya. Fogel, E. I. Buchstab, O. A. Koretzkaja, A. S. Pokhila, V. G. Cherkasova, and S. A. Yulin

The results are given of the investigations of the superconducting and kinetic parameter dependences on the metal layer thickness for Mo films and Mo/Si multilayers in the same thickness range. It is found that quantum size oscillations observed on Mo/Si multilayers are absent on the single Mo films. It follows from the comparison of the data obtained for films and superlattices that oscillation effects characteristic for multilayered samples cannot be explained in terms of usual quantum size effect. This effect is absent in the individual Mo films because of strong disordering leading to the mean free paths of electrons less than the film thickness. The size oscillations associated with the space quantization of the electron spectrum should not be observed on Mo/Si multilayers too, because Mo layers in superlattices are also strongly disordered. Most likely, one may explain the oscillation effects on superlattices if taking into account the tunnel properties of semiconducting barriers separating metal layers.