

**КВАНТОВЫЕ ЭФФЕКТЫ В ПРОВОДИМОСТИ
СВЕРХПРОВОДЯЩИХ ПЛЕНОК НИТРИДА ТИТАНА ПРИ $T > T_c$ ***

Представлены результаты экспериментального исследования эффектов слабой локализации и электрон-электронного взаимодействия на процессы переноса заряда в области флуктуационной проводимости в тонких сверхпроводящих пленках нитрида титана. Показано, что магнитосопротивление пленок вблизи сверхпроводящего перехода, главным образом, обусловлено подавлением когерентного рассеяния электронов, составляющих флуктуационную куперовскую пару (поправки Маки – Томпсона). Обнаружено, что рассеяние на сверхпроводящих флуктуациях при температурах близких к критической (T_c) приводит к увеличению частоты сбоя фазы.

Введение

Изучение квантовых эффектов (слабой локализации и электрон-электронного взаимодействия) в неупорядоченных системах с металлическим типом проводимости уже около 25 лет играет значительную роль в современной физике конденсированного состояния. Эти эффекты приводят к появлению поправок к классической проводимости (выражаемой формулой Друде), аномальным образом зависящих от температуры и магнитного поля. Исследования температурной и магнитополевой зависимостей сопротивления при низких температурах дают возможность определения целого ряда времен релаксации энергии, спина и фазы волновой функции электронов проводимости [1].

Наиболее хорошо изучены особенности низкотемпературного поведения тонких пленок нормальных металлов и полупроводниковых слоев, в то же время сверхпроводящие пленки исследованы крайне мало. Однако в сверхпроводниках во флуктуационной области могут наблюдаться существенно иные соотношения между величинами вкладов различных квантовых эффектов, что связано с усилением электрон-электронного взаимодействия по мере приближения к температуре сверхпроводящего перехода [2]. Интерес к сверхпроводящим пленкам именно нитрида титана вызван еще и тем, что, как показано в работах [3–5], данный

материал по мере роста беспорядка или уменьшения толщины пленок демонстрирует квантовый фазовый переход сверхпроводник – изолятор. Это делает актуальным исследование квантовых эффектов в проводимости пленок, находящихся на сверхпроводящей стороне данного перехода.

Вопросы теории

Основные положения теории квантовых поправок к проводимости неупорядоченных систем заключаются в следующем:

– диффузионное движение электронов сопровождается интерференцией волновых функций невзаимодействующих электронов [6];

– при низких температурах в неупорядоченных системах возрастает роль электрон-электронного взаимодействия, по сравнению с тем, что имеет место в идеальном кристалле [7–9].

Возникающие при учете данных эффектов квантовые поправки к проводимости принято делить на два класса.

1. Одноэлектронная или интерференционная поправка, обусловленная квантовой интерференцией одного электрона с самим собой при его диффузионном движении, известная как слаболокализационная поправка (WL).

2. Поправки, возникающие при учете взаимодействия между электронами. По-

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 06-02-16704) и программы РАН «Квантовая макрофизика».

Благодарим М. Р. Бакланова и А. Сатта из Interuniversity Microelectronic Center (Бельгия) за предоставление пленок TiN.

следние принято делить на два типа поправок, соответствующих взаимодействию между электронами с близкими энергиями и импульсами (так называемый диффузионный канал) (ID) [8; 9] и взаимодействию между электронами с близкими энергиями и малым суммарным импульсом (так называемый куперовский канал). В свою очередь, поправки от взаимодействия в куперовском канале (также известные как флуктуационные поправки) принято делить на три вида:

- вклад, соответствующий флуктуационному спариванию электронов (поправка Асламова – Ларкина (AL)) [10; 11] (данная поправка обусловлена прямой проводимостью куперовских пар);

- вклад в проводимость, соответствующий изменению плотности состояний (DOS) в результате электрон-электронного взаимодействия (поправка к плотности состояний отражает тот факт, что в результате флуктуационного спаривания выше температуры перехода уменьшается плотность нормальных электронов, что в соответствии с формулой Друде приводит к уменьшению проводимости нормальных электронов);

- вклад, соответствующий когерентному рассеянию электронов, составляющих флуктуационную куперовскую пару (поправка Маки – Томпсона (MT)) [12–14].

Таким образом, температурная и магнитополевая зависимости проводимости $G(T, B) = G_0 + \Delta G_{WL} + \Delta G_{ID} + \Delta G_{AL} + \Delta G_{DOS} + \Delta G_{MT}$, где G_0 – друдевская проводимость.

Вид температурной и магнитополевой зависимостей квантовых поправок определяется соотношениями между размерами системы и характерными длинами, фигурирующими в теории. Характерным масштабом для WL является длина диффузии электрона за время релаксации фазы его волновой функции τ_ϕ т. е. $l_\phi = (D\tau_\phi)^{1/2}$, где D – коэффициент диффузии, для эффектов взаимодействия – длина когерентности

$$l_T = (2\pi\hbar D / kT)^{1/2} \quad (1)$$

На длине l_T сохраняется пространственная когерентность двух квазичастиц с разностью энергий $\sim kT$. При условии, что толщина пленки $d < l_\phi$, l_T , электронный газ является эффективно двумерным по отношению к эффектам слабой локализации и электрон-электронного взаимодействия. Такие проводники называются квазидвумерными, и, как будет показано

далее, исследуемые в данной работе пленки TiN относятся именно к этому классу объектов. Ввиду этого при дальнейшем обсуждении основных теоретических положений мы ограничимся квази-двумерным случаем.

Конкретизируем результаты теории применительно к случаю квазидвумерной пленки металла с эффективным электрон-электронным притяжением. Точный расчет магнитополевой зависимости слаболокализационной поправки с учетом спин-орбитального рассеяния, в поле перпендикулярном плоскости пленки, дает следующее выражение для этой поправки [15]:

$$\frac{\Delta G^{WL}(B)}{G_{00}} = \frac{3}{2} Y\left(\frac{4DeB}{\hbar} \tau_\phi^*\right) - \frac{1}{2} Y\left(\frac{4DeB}{\hbar} \tau_\phi\right), \quad (2)$$

где $Y(x) = \ln x + \psi(1/2 + 1/x)$, $\psi(y)$ – логарифмическая производная Γ -функции, $(\tau_\phi^*)^{-1} = (\tau_\phi)^{-1} + 4(3\tau_{so})^{-1}$, τ_{so} – время спин-орбитального рассеяния, $G_{00} = e^2 / (2\pi^2 \hbar)$.

Как было показано А. И. Ларкиным [14], поправка Маки – Томпсона имеет такую же функциональную зависимость:

$$\frac{\Delta G^{MT}(B)}{G_{00}} = -\beta(T) \cdot Y\left(\frac{4DeB}{\hbar} \tau_\phi\right). \quad (3)$$

Функция $\beta(T)$ определяется температурной зависимостью константы электрон-электронного взаимодействия $g(T)$. Знак поправки MT не зависит от знака $g(T)$ и приводит к положительному магнитосопротивлению. Особенность в проявлении этой поправки в пленках сверхпроводников при температуре выше критической связана с тем, что по мере приближения T к T_c резко возрастают электрон-электронное взаимодействие и, соответственно, вклад поправки MT в магнитосопротивление. Зависимость $\beta(T)$ от $g(T)$ табулирована в работе [14]. Позднее в работе [16] было указано, что выражение (2) правильно описывает магнитосопротивление только при температурах вдали от сверхпроводящего перехода и в очень слабых магнитных полях, и было получено следующее выражение:

$$\frac{\Delta G^{MT}(T, B)}{G_{00}} = -\beta(T, \tau_\phi) Y\left[\left(\frac{4DeB}{\hbar} \tau_\phi\right) - Y\left(\frac{\pi DeB}{2kT \ln(T/T_c)}\right)\right]. \quad (4)$$

Функция $\beta(T)$, определявшаяся в работе [14] только температурной зависимостью константы межэлектронного взаимодействия $g(T)$, теперь также включает зависимость от τ_ϕ . В пределе $\hbar/(kT\tau_\phi) \rightarrow 0$ функция $\beta(T, \tau_\phi)$ сводится к функции Ларкина $\beta(T)$, а при температурах $\ln(T/T_c) \ll 1$ имеет следующий вид:

$$\beta(T, \tau_\phi) = \frac{\pi^2}{4} \frac{1}{\ln(T/T_c) - \delta}, \quad (5)$$

где параметр распаривания

$$\delta = \pi\hbar / (8kT\tau_\phi). \quad (6)$$

Мы не будем приводить выражения для магнитолевых зависимостей остальных поправок, поскольку при реализующихся в эксперименте условиях они пренебрежимо малы. А именно, поправка от взаимодействия в диффузионном канале (ID) начинает существенно зависеть от магнитного поля только в области классически сильных магнитных полей ($\omega_c \tau \approx 1$). Вклад DOS также является незначительным в области слабых магнитных полей, существенных для вкладов WL и MT. Магнитолевой зависимостью вклада Асламазова – Ларкина также можно пренебречь при выполнении условия $T - T_c \gg \hbar/k\tau_\phi$ [17]. Таким образом, для анализа магнитосопротивления в слабых магнитных полях, как правило, достаточно учета слаболокализационной поправки и поправки Маки – Томпсона.

Эксперимент

В данной работе исследованы сверхпроводящие пленки нитрида титана (TiN) различной толщины (5, 7 и 18 нм), выращенные по технологии атомарно-слоевого осаждения из газовой фазы на предварительно термически окисленных кремниевых подложках. Детали технологического процесса изложены в работе [18]. Исследования в электронном микроскопе показывают, что пленки являются поликристаллическими с очень плотно упакованными кристаллитами, средний размер которых составляет 30 нм. Далее методом фотолитографии с последующим плазмохимическим травлением формировались мезаструктуры в виде мостиков (см. рис. 1).

Эксперименты заключались в измерении температурной и магнитолевой зависимо-

стей сопротивления по четырехточечной схеме методом синхронного детектирования на низкой частоте (1–10 Гц). Магнитное поле прикладывалось перпендикулярно плоскости пленки.

На рис. 1 представлены температурные зависимости сопротивления «на квадрат» для исследованных пленок при нулевом магнитном поле. На зависимостях отсутствуют какие-либо изломы или ступеньки, что указывает на однородность пленок, т. е. отсутствие макроскопических неоднородностей с сильно отличающимися критическими температурами. Из рисунка видно, что T_c уменьшается с уменьшением толщины пленок. Такое поведение согласуется с современными представлениями о подавлении температуры сверхпроводящего перехода при увеличении сопротивления [19; 20].

Для всех образцов были проведены магнитотранспортные изменения при низких температурах в полях до 4 Тл. В целом поведение магнитосопротивления $R(B, T_i)$ всех пленок схоже. При представлении результатов мы сосредоточимся на данных для пленки толщиной 18 нм (рис. 2). При помещении образцов в магнитное поле, перпендикулярное плоскости пленок, в слабых магнитных полях даже при температурах много больших T_c наблюдается положительное магнитосопротивление. При $T \gg T_c$ поведение пленок сверхпроводника не должно существенно отличаться от поведения пленок нормального металла вследствие слабости эффективного электрон-электронного взаимодействия. В этом случае магнитосопротивление в области классически слабого магнитного поля главным образом обусловлено слаболокализационными эффектами. С точки зрения теории квантовых поправок, положительное магнитосопротивление свидетельствует о том, что время релаксации спина за счет спин-орбитального взаимодействия меньше или порядка времени сбоя фазы. По мере уменьшения температуры и приближения к T_c изменение сопротивления в магнитном поле увеличивается, что обусловлено вкладом сверхпроводящих флуктуаций и их подавлением магнитным полем.

Значения параметров теории квантовых поправок к проводимости определяются путем сопоставления экспериментальных и теоретических зависимостей изменения проводимости во внешнем магнитном поле:

$$\Delta G(B) = 1/R(B) - 1/R(B=0).$$

Поскольку характер проявления квантовых эффектов в проводимости зависит от эффективной размерности электронного газа, то прежде чем переходить к сопоставлению, необходимо определить эффективную размерность путем сравнения толщины пленок с характеристическими длинами теории. Для рассматриваемых эффектов такими длинами являются длина сбоя фазы l_ϕ и длина когерентности l_T (1), так как $l_\phi \geq l_T$, то достаточно оценить l_T . Для пленки толщиной 18 нм коэффициент диффузии равен $D = 0,48 \text{ см}^2/\text{с}$, что дает $l_T \approx 17 \text{ нм}$ при $T = 8 \text{ К}$ ($l_T \approx 28 \text{ нм}$ при $T = 3 \text{ К}$). Другими словами, практически во всем диапазоне температур электронный газ является двумерным по отношению к эффектам слабой локализации и электрон-электронного взаимодействия.

На рис. 3 символами приведены зависимости проводимости $\Delta G(B)$. Сплошными линиями показаны теоретические зависимости, рассчитанные с учетом вклада слабой локализации (2) и вклада Маки – Томпсона (4), т. е. теоретические зависимости есть $\Delta G_{Th}(B) = \Delta G^{WL}(B) + \Delta G^{MT}(B)$. Сопоставление экспериментальных зависимостей с теоретическими осуществлялось с помощью программы Mathcad13. Результатом этой процедуры являются температурные зависимости параметра $\beta(T)$, времени сбоя фазы $\tau_\phi(T)$ и времени спин-орбитального рассеяния τ_{so} . Параметры τ_{so} , $\beta(T)$ и $\tau_\phi(T)$ (только эти параметры были свободными при подгонке) определялись методом наименьших квадратов, исходя из условия наилучшей аппроксимации экспериментальной зависимости теоретическими в области слабых магнитных полей. При этом параметр τ_{so} не зависел от температуры. Наилучшей аппроксимации отвечает $\tau_{so} = 5 \cdot 10^{-12} \text{ с}$. Это значение очень хорошо согласуется с результатами, полученными в работе [21] при исследовании поведения пленок TiN в параллельном поле при температурах ниже критической.

Знание температурной зависимости времени сбоя фазы $\tau_\phi(T)$ позволяет определить температурную зависимость параметра распаривания Маки – Томпсона (6) (см. рис. 4, вставка). Как видно из рисунка, параметр распаривания зависит от температуры. Процессами, приводящими к сбою фазы волновой функции электрона и определяющими

величину τ_ϕ , могут быть неупругое рассеяние на фононах и на электронах. Как показывают многочисленные исследования тонких металлических пленок нормальных металлов, при $T < 5 \text{ К}$ рассеянием на фононах можно пренебречь, и основным механизмом сбоя фазы при низких температурах становится рассеяние электронов на флуктуациях электромагнитного поля, возникающих при

$$\tau_N^{-1} = \frac{\pi k T}{\hbar} \frac{e^2 R}{2\pi^2 \hbar} \ln \frac{\pi \hbar}{e^2 R} \quad (7)$$

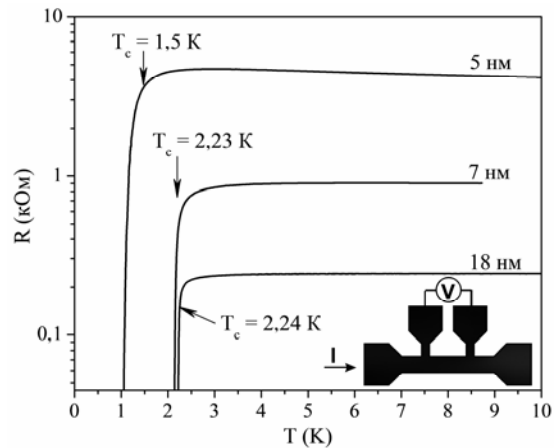


Рис. 1. Температурные зависимости сопротивления пленок TiN различной толщины. На вставке схематично изображен вид мезаструктур

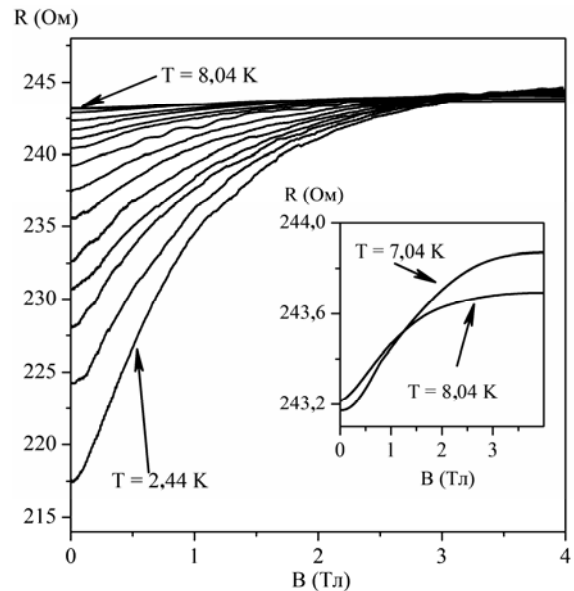


Рис. 2. Экспериментальные магнитополевые зависимости сопротивления пленки TiN толщиной 18 нм, измеренные при различных температурах: $T = 2,44; 2,54; 2,64; 2,74; 2,84; 3,04; 3,24; 3,64; 3,84; 4,04; 4,54; 5,04; 6,04; 7,04; 8,04 \text{ К}$. На вставке приведены те же зависимости $R(B, T_i)$ при температурах 7,04; 8,04 К в меньшем масштабе

диффузионном движении носителей (шум Найквиста). При этом время сбоя фазы ограничивается временем Найквиста [22]

Заметим, что если бы данный механизм сбоя фазы был единственным, то параметр распаривания (5) не зависел бы от температуры и определялся только величиной сопротивления квазидвумерной пленки. Дей-

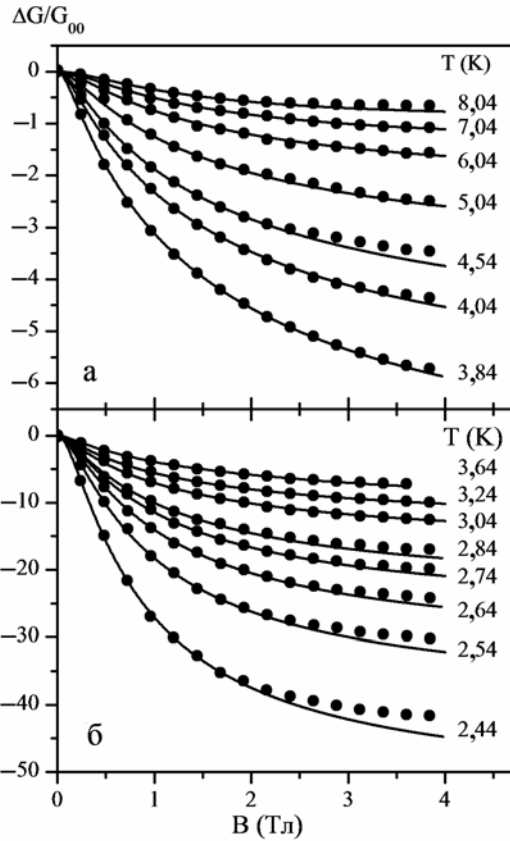


Рис. 3. Изменение проводимости (ΔG в единицах $G_{00} = e^2/(2\pi^2\hbar)$) пленки TiN толщиной 18 нм в магнитном поле при различных температурах и сравнение с теоретическими зависимостями.

• – экспериментальные данные. Сплошные линии – теоретические зависимости, учитывающие вклад слабой локализации и поправки Маки – Томпсона

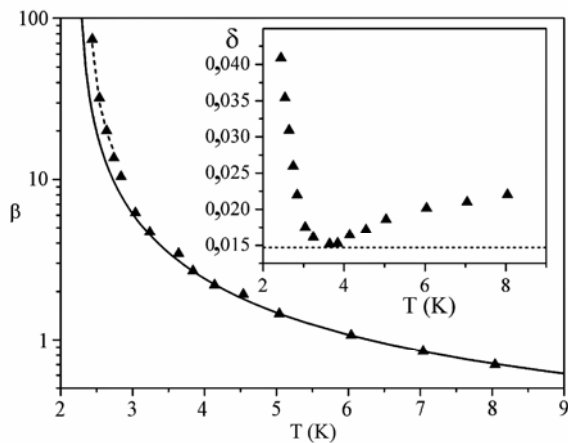


Рис. 4. Температурная зависимость $\beta(T)$ и параметра распаривания Маки – Томпсона (показано на вставке)

ствительно, полагая $\tau_\phi = \tau_N$ и подставляя (7) в (6), получаем

$$\delta = \frac{e^2 R}{16\hbar} \ln \frac{\pi\hbar}{e^2 R}.$$

Для TiN толщиной 18 нм это дает значение $\delta = 0,0147$, которое показано на вставке рис. 4 пунктирной линией. Сравнение с экспериментальными данными показывает, что полученные значения параметра распаривания несколько превышают теоретическое значение. В то время как при температурах более 4 К данное отклонение может быть обусловлено дополнительным рассеянием на фононах, резкое возрастание параметра распаривания по мере приближения к критической температуре явно указывает на наличие дополнительного механизма сбоя фазы за счет рассеяния на сверхпроводящих флуктуациях. До настоящего момента аналогичный эффект наблюдался только на пленках алюминия [23; 24].

Температурные зависимости $\beta(T)$, полученные из сопоставления экспериментальных зависимостей магнитосопротивления с теоретическими, показаны на рис. 4 символами. Сплошной линией изображена теоретическая зависимость, соответствующая $\beta(T)$ Ларкина [14]. Штриховой линией показан расчет по формуле (5), которая справедлива только при $\ln(T/T_c) \ll 1$. При расчете мы подставляли значения δ , полученные из формулы (6). Видно, что при $T \rightarrow T_c$ значения $\beta(T)$, соответствующие выражению (5), больше, чем даваемые теорией Ларкина [14]. В целом экспериментальная зависимость $\beta(T)$ находится в хорошем согласии с теоретическими, и в области низких температур $T \rightarrow T_c$ лучше описывается теорией [16], учитывающей зависимость β от времени сбоя фазы волновой функции электронов через параметр распаривания.

Таким образом, из магнитотранспортных измерений сверхпроводящих пленок TiN вдали и вблизи сверхпроводящего перехода определены основные квантовые поправки к проводимости. Установлено, что при $T \gg T_c$ основным является слаболокационный вклад со спин-орбитальным рассеянием. По мере приближения к температуре сверхпроводящего перехода появляется вклад от рассеяния носителей на сверхпроводящих флуктуациях, описываемый поправкой Маки – Томпсона, и вблизи сверхпроводящего перехода он становится определяющим. Из измерений магнитосопротив-

ления определена температурная зависимость времени сбоя фазы. Обнаружено, что рассеяние на сверхпроводящих флуктуациях при температурах близких к критической приводит к увеличению частоты сбоя фазы.

Список литературы

1. *Altshuler B. L., Aronov A. G.* Electron-Electron Interaction In Disordered Conductors // *Electron-Electron Interaction In Disordered Systems* / Ed. by A. L. Efros, M. Pollak. North-Holland; Amsterdam: Elsevier Science, 1985. P. 1–153.
2. *Larkin A., Varlamov A.* Fluctuation Phenomena in Superconductors // *Handbook on Superconductivity: Conventional and Unconventional Superconductors* / Ed. by K.-H. Bennemann, J. B. Ketterson. Springer, 2002.
3. *Baturina T. I., Islamov D. R., Bentner J. et al.* Superconductivity on the localization threshold and magnetic-field-tuned superconductor-insulator transition in TiN films // *Письма в ЖЭТФ*. 2004. Т. 79, вып. 7–8. С. 416–420.
4. *Baturina T. I., Bentner J., Strunk C. et al.* From quantum corrections to magnetic-field-tuned superconductor-insulator quantum phase transition in TiN films // *Physica B*. 2005. Vol. 359–361. P. 500–502.
5. *Baturina T. I., Strunk C., Baklanov M. R. et al.* Quantum Metallicity at the High-Field Side of the Superconductor-Insulator Transition // *Cond-mat*. 2006. 0602557. 4 p.
6. *Abrahams E., Anderson P. W., Licciardello D. C. et al.* Scaling theory of localization: absence of quantum diffusion in two dimensions // *Phys. Rev. Lett.* 1979. Vol. 42. No. 10. P. 673–676.
7. *Горьков Л. П., Ларкин А. И., Хмельницкий Д. Е.* Проводимость частицы в двумерном случайном потенциале // *Письма в ЖЭТФ*. 1979. Т. 30, вып. 4. С. 248–252.
8. *Альтшулер Б. Л., Аронов А. Г.* К теории неупорядоченных металлов и сильнолегированных полупроводников // *ЖЭТФ*. 1979. Т. 77, вып. 5 (11). С. 2028–2044.
9. *Altshuler B. L., Aronov A. G., Lee P. A.* Interaction Effects in Disordered Fermi Systems in Two Dimensions // *Phys. Rev. Lett.* 1980. Vol. 44. No. 19. P. 1288–1291.
10. *Асламазов Л. Г., Ларкин А. И.* Влияние флуктуаций на свойства сверхпроводника при температурах выше критической // *ФТТ*. 1968. Т. 10, вып. 4. С. 1104–1111.
11. *Aslamazov L. G., Larkin A. I.* The influence of fluctuation pairing of electrons on the conductivity of normal metal // *Phys. Lett.* 1968. Vol. 26A. P. 238–239.
12. *Maki K.* The Critical Fluctuation of the Order Parameter in Type-II Superconductors // *Prog. Theor. Phys.* 1968. Vol. 39. No. 4. P. 897–906.
13. *Thompson R. S.* Microwave, Flux Flow, and Fluctuation Resistance of Dirty Type-II Superconductors // *Phys. Rev. B*. 1970. Vol. 1. P. 327–333.
14. *Ларкин А. И.* Магнетосопротивление двумерных систем // *Письма в ЖЭТФ*. 1980. Т. 31, вып. 4. С. 239–243.
15. *Hikami S., Larkin A. I., Nagaoka Y.* Spin-Orbit Interactions and Magnetoresistance in Two Dimensional Random System // *Prog. Theor. Phys.* 1980. Vol. 63. P. 707–710.
16. *Lopes dos Santos J. M. B., Abrahams E.* Superconducting fluctuation conductivity in a magnetic field in two dimensions // *Phys. Rev. B*. 1985. Vol. 31. No. 1. P. 172–176.
17. *Альтшулер Б. Л., Варламов А. А., Рейзер М. Ю.* Эффекты межэлектронного взаимодействия и проводимость неупорядоченных двумерных электронных систем // *ЖЭТФ*. 1983. Т. 84, вып. 6. С. 2280–2289.
18. *Satta A.* Growth mechanism and properties of atomic layer deposited ultra-thin TiN films // *Thesis. Interuniversitair Micro-Electronica Centrum vzw. Leuven, Belgium*, 2003.
19. *Финкельштейн А. М.* О температуре сверхпроводящего перехода в аморфных пленках // *Письма в ЖЭТФ*. 1987. Т. 45, № 1. С. 37–40.
20. *Finkel'stein A. M.* Suppression of superconductivity in homogeneously disordered systems // *Physica B*. 1994. Vol. 197. P. 636–648.
21. *Suzuki T., Seguchi Ya., Tsuboi T.* Fermi liquid Effect on tricritical superconducting transition in thin TiN films under the spin paramagnetic limitation // *J. Phys. Soc. Jpn.* 2000. Vol. 69. No. 5. P. 1462–1471.
22. *Altshuler B. L., Aronov A. G., Khmel'nitsky D. E.* Effects of electron-electron collisions with small energy transfers on quantum localisation // *J. Phys. C: Solid State Physics*. 1982. Vol. 15. No. 36. P. 7367–7386.
23. *Gordon J. M., Lobb C. J., Tinkham M.* Divergent phase-breaking rate in aluminum films from magnetoresistance measurements // *Phys. Rev. B*. 1984. Vol. 29. No. 9. P. 5232–5235.
24. *Gordon J. M., Goldman A. M.* Electron inelastic scattering in aluminum films and wires at temperatures near the superconducting transition // *Phys. Rev. B*. 1986. Vol. 34. No. 3. P. 1500–1507.