

Переход сверхпроводник–изолятор в пленках NbTiN

М. В. Бурдастых^{a,b}, С. В. Постолова^{a,b}, Т. И. Батурина^{a,b}, Т. Пролие^{c,d1)}, В. М. Винокур^{d,e1)},
А. Ю. Миронов^{a,b2)}

^aИнститут физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия

^bНовосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

^cInstitut de recherches sur les lois fondamentales de l'univers, Commissariat de l'énergie atomique et aux énergies renouvelables-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

^dMaterials Science Division, Argonne National Laboratory, IL 60439 Argonne, USA

^eComputation Institute, University of Chicago, IL 60637 Chicago, USA

Поступила в редакцию 2 ноября 2017 г.

Представлены экспериментальные результаты, указывающие на прямой переход сверхпроводник–изолятор по беспорядку в тонких пленках NbTiN. Показано, что с ростом сопротивления на квадрат в нормальном состоянии критическая температура сверхпроводящего перехода T_c подавляется в соответствии с фермионным механизмом подавления сверхпроводимости беспорядком. В то же время наблюдается полное подавление температуры перехода Березинского–Костерлица–Таулесса при ненулевой критической температуре и, далее, изменение основного состояния на изолирующее, что характерно для бозонной модели подавления сверхпроводимости беспорядком. Продемонстрировано, что температурные зависимости сопротивления изолирующих пленок следуют активационному закону Аррениуса.

DOI: 10.7868/S0370274X17230114

Переход сверхпроводник–изолятор (SIT) в тонких разупорядоченных пленках является объектом теоретических и экспериментальных исследований на протяжении уже нескольких десятилетий [1–3]. Характерной особенностью данного перехода является подавление критической температуры сверхпроводящего перехода T_c при приближении к SIT. В связи с этим начало его изучения можно соотнести с наблюдением подавления критической температуры перехода при уменьшении толщины образца [1]. Дальнейшие работы показали, что наилучшая корреляция возникает не между T_c и толщиной пленки, а между T_c и сопротивлением квадратного участка пленки R_{\square} , так называемым сопротивлением на квадрат [4]. Позднее, подавление T_c при увеличении сопротивления пленки в нормальном состоянии было описано на микроскопическом уровне в работе [5]. На сегодняшний день существуют два основных сценария, объясняющие квантовый переход из сверхпроводящего состояния в изолирующее – фермионный [5], в котором куперовские пары разрушаются, а нормальные электроны локализируются в несверхпроводящем состоянии, и бозонный [6, 7], когда купе-

ровские пары локализируются, но продолжают существовать в изолирующем состоянии. Таким образом, в случае фермионного сценария переход от сверхпроводящего к изолирующему состоянию происходит в два этапа: при увеличении сопротивления на квадрат в нормальном состоянии R_{\square} сначала происходит переход сверхпроводник–металл вследствие полного исчезновения куперовских пар, далее наблюдается обширная область R_{\square} металлических состояний и, затем, происходит переход металл–изолятор. В рамках бозонного сценария переход из сверхпроводящей фазы в изолирующую происходит через металлическое состояние, которое реализуется в одной точке при сопротивлении R_c [7]. В обычных сверхпроводниках переход сверхпроводник–металл–изолятор зачастую наблюдается в германидах и силицидах различных соединений [8, 9, 10], а прямой переход сверхпроводник–изолятор при увеличении R_{\square} в нормальном состоянии (D-SIT), иначе говоря при увеличении беспорядка, обнаружен в пленках оксида индия InO_x [11–13], бериллия Be [14], а также в пленках нитрида титана TiN [15]. В то же время сопротивление R_c в вышеупомянутых экспериментах, вопреки ранним ожиданиям, не являлось универсальным и равным кванту сопротивления $h/4e^2 = 6.45 \text{ кОм}/\square$. В настоящее время существует несколько различ-

¹⁾T. Proslie, V. M. Vinokur.

²⁾e-mail: mironov@isp.nsc.ru

ных теоретических моделей образования изолирующей фазы при увеличении беспорядка [6, 7, 16, 17] и вопрос о конкретном механизме D-SIT на сегодняшний день является открытым.

В данной работе представлены результаты экспериментального исследования перехода сверхпроводник–изолятор по беспорядку в пленках $\text{Nb}_{0.67}\text{Ti}_{0.33}\text{N}$. Фундаментальный интерес к указанному соединению вызван тем фактом, что его кристаллическая решетка соответствует решетке нитрида ниобия NbN с заменой 33% атомов ниобия на атомы титана. При этом пленки чистого NbN обладают отличными сверхпроводящими свойствами (T_c до 20 К, а значение верхнего критического поля $B_{c2}(0)$ до 20 Тл [18, 19]), тогда как T_c и $B_{c2}(0)$ пленок TiN в несколько раз меньше. При этом в пленках NbN при увеличении беспорядка происходит переход сверхпроводник–металл–изолятор, а в пленках TiN наблюдается прямой переход D-SIT [20]. Таким образом, при замещении атомов Ti в TiN атомами Nb появляется возможность усилить сверхпроводящие свойства пленки и в то же время изменить характерные параметры перехода сверхпроводник–изолятор.

В качестве объекта исследования выступал набор пленок NbTiN, выращенных методом атомарно-слоевого осаждения при температуре 350 °С. Изготовленные пленки имели толщину $d = 9 \div 18$ нм. В качестве меры степени беспорядка мы взяли сопротивление при азотной температуре R_{77} от 0.7 кОм до 4.6 кОм. Для получения пленок толщиной менее 9 нм была использована процедура плазмохимического травления длительностью до 7 с. Измерение температурных зависимостей сопротивления проводилось на образцах, изготовленных методом фотолитографии, в виде холловских мостиков шириной 50 мкм. Расстояние между потенциометрическими контактами составляло 450 мкм, расстояние между токовыми контактами – 2.5 мм. Низкотемпературные эксперименты проводились в парах жидкого гелия ^4He и в криостате растворения $^3\text{He}/^4\text{He}$. Сопротивление низкоомных пленок с $R(T) < 1$ МОм измерялось по стандартной четырехточечной схеме на переменном токе $I \sim 1$ нА низкой частоты $f = 3.33$ Гц. Для измерения сопротивления высокоомных образцов с $R(T) \geq 1$ МОм использовалась двухточечная схема подключения при переменном напряжении $U \sim 100$ мкВ низкой частоты $f = 3.33$ Гц. Все измерения проводились в линейном режиме, что проверялось прямым измерением вольт-амперных характеристик пленок.

На рис. 1а приведено изображение поперечного среза последней сверхпроводящей пленки толщи-

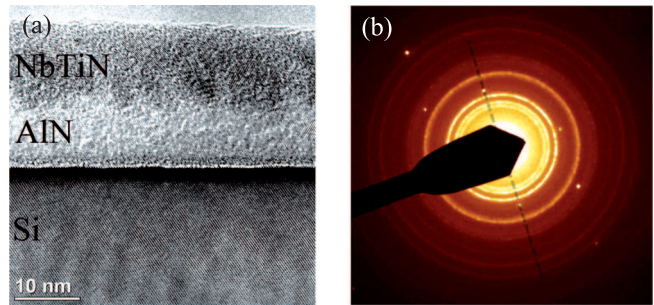


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Изображение поперечного среза в высокоразрешающем просвечивающем электронном микроскопе. (б) – Дифракционная картина

ной 10 нм в высокоразрешающем просвечивающем электронном микроскопе. На снимке видны нанесенные слои: кремниевая подложка, буферный слой AlN и слой NbTiN. Буферный слой использовался для улучшения согласования постоянных решеток NbTiN и Si. Видно, что пленка имеет большую степень однородности по толщине, а также четкие границы. Характерная дифракционная картина изображена на рис. 1б. Яркие точки соответствуют рефлексам от атомов кремния в подложке. Хорошо различимы концентрические окружности, характерные для поликристаллических материалов.

На рис. 2а представлена эволюция температурных зависимостей сопротивления пленок. Для сверхпроводящих образцов с сопротивлением $R_{77} < 5.4$ кОм (показаны красной штриховой линией) при понижении температуры сначала наблюдается рост сопротивления, причем в диапазоне $10T_c < T < 300$ К он хорошо описывается логарифмическим законом

$$R(T) = R_t \ln \left(\frac{T_t}{T} \right), \quad (1)$$

что видно на рис. 2б. Аналогичное поведение сопротивления наблюдалось ранее в гранулированных системах [21] и до сих пор не получило исчерпывающего объяснения [22].

При дальнейшем охлаждении при $T = T_{\max}$ сопротивление достигает максимума R_{\max} и начинает уменьшаться вплоть до неизмеримо малых значений, что соответствует переходу в сверхпроводящее состояние. В то же время сопротивление пленок с $R_{77} > 6.2$ кОм (показаны синей пунктирной кривой) монотонно растет при температурах ниже 0.4 К, что указывает на их диэлектрическую природу. Два образца с промежуточными значениями R_{77} (розовые сплошные линии) нельзя однозначно отнести к какому-либо типу, поскольку их сопротивле-

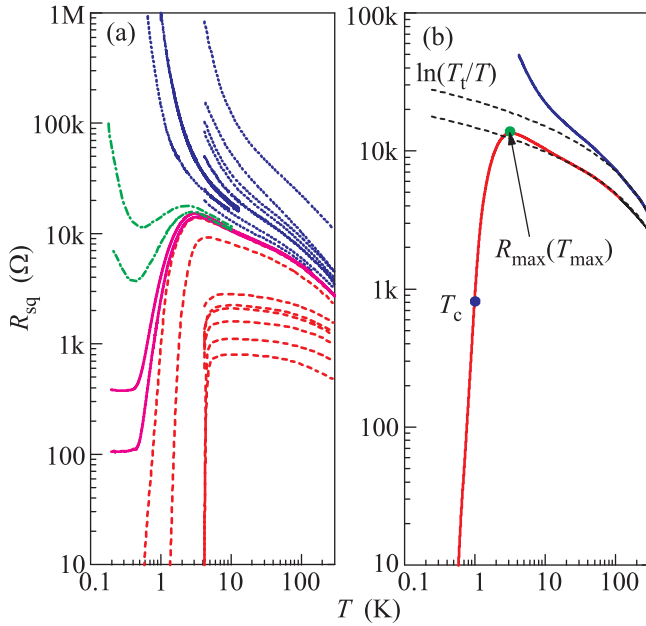


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Температурные зависимости сопротивления различных пленок NbTiN в двойном логарифмическом масштабе. (б) – Изображение способа определения характерных параметров. Сплошные линии – экспериментальные данные, штриховые кривые – теоретическое описание с помощью логарифмического закона (1), жирные точки указывают значения характерных параметров

ние, с одной стороны, уменьшается при низких температурах, а с другой стороны, оно и не зануляется при всех достигнутых в ходе экспериментов температурах. Причем сопротивление указанных пленок падает на порядок величины от R_{max} при $T < 3$ К, что указывает на формирование сверхпроводящих областей, связанных слабыми связями. Можно предполагать, что в этом случае квантовый транспорт в системе определяется соотношением между эффективной джозефсоновской E_J и эффективной кулоновской E_C составляющими энергии взаимодействия сверхпроводящих островков, а так как сопротивление более высокоомных пленок (показаны зелеными штрихпунктирными кривыми) после достижения минимума снова начинает увеличиваться при понижении температуры, можно предположить, что в данном случае имеет место соотношение энергий $E_C > E_J$ [17].

Разность сопротивлений между последней сверхпроводящей и первой диэлектрической пленками при 77 К составляет менее 2%, что позволяет утверждать об осуществлении прямого перехода сверхпроводник–изолятор по беспорядку. Кроме того, так как сопротивление сверхпроводящих

пленок зависит от температуры немонотонным образом, то сепаратриса между сверхпроводящей и изолирующей сторонами перехода представляет собой негоризонтальную кривую $R_{sq}(T) \neq const$, что противоречит теории [7].

Температурные зависимости сопротивления пленок на сверхпроводящей стороне D-SIT были проанализированы с использованием теории квантовых вкладов в проводимость (QCC) [23–28] и теории перехода Березинского–Костерлица–Таулесса [29–31]. Результаты сравнения экспериментальных данных с предсказаниями теории QCC для некоторых пленок представлены на рис. 3а. Видно, что при температурах $1.5T_c < T < 20$ К наблюдается хорошее согласие эксперимента и теории. Полученная в результате анализа критическая температура T_c с точностью до 6% совпадает со значением, определенным по точкам на кривых $R(T)$, в которых сопротивление пленки составляет 10% от сопротивления при азотной температуре (соответствующая точка показана зеленым на рис. 2б). Температура $T_{ВКТ}$ определялась с помощью подгонки экспериментальных данных выражением:

$$R(T) \propto \exp \left[-b \left(T/T_{ВКТ} - 1 \right)^{-1/2} \right], \quad (2)$$

предложенным в работах [32–34]. Здесь b – постоянная порядка единицы. Параметр $T_{ВКТ}$ подбирался таким образом, чтобы при температурах $T < T_c$ зависимости $R(T)$ являлись линейными. Характерный вид полученной кривой для одной из пленок представлен на рис. 3б.

Зависимости температур T_c и $T_{ВКТ}$ от степени беспорядка приведены на рис. 3с. Сплошными символами показаны экспериментальные значения T_c , открытыми символами – $T_{ВКТ}$. Линии соответствуют теоретической зависимости T_c от сопротивления в нормальном состоянии в рамках фермионного механизма подавления сверхпроводимости:

$$\ln \left(\frac{T_c}{T_{c0}} \right) = \frac{1}{|\gamma|} - \frac{1}{\sqrt{2r}} \ln \left(\frac{\gamma - r/4 - \sqrt{r/2}}{\gamma - r/4 + \sqrt{r/2}} \right), \quad (3)$$

здесь $\gamma = 1/\ln(kT_{c0}\tau/\hbar)$, $r = e^2 R_{sq}(2\pi^2\hbar)^{-1}$, τ – время свободного пробега, а T_{c0} соответствует критической температуре в объемном образце. В качестве характерного сопротивления R_* было выбрано два разных значения – сопротивление R_{max} в максимуме $R(T)$ и коэффициент R_t из выражения (1). Следует отметить, что такой выбор характерных сопротивлений приводит к появлению двух разных величин времени свободного пробега τ . Причем значение τ , соответствующее кривой $T_*(R_t)$, оказывается наиболее близко к значению времени свободного пробега,

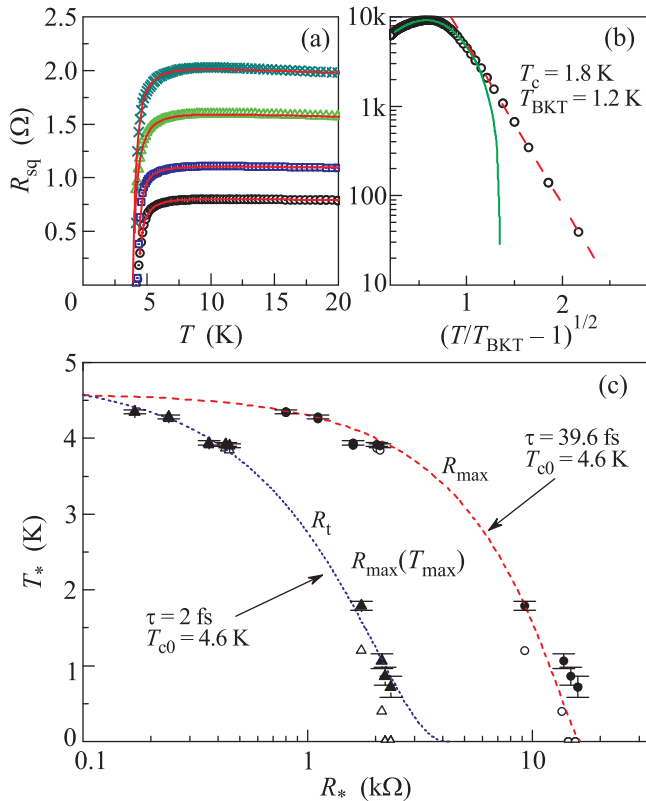


Рис. 3. (Цветной онлайн) Сверхпроводящая сторона D-SIT. Символы соответствуют экспериментальным данным. (а) – Сравнение экспериментальных результатов и теории QСС. Сплошными линиями показаны результаты теоретического расчета. (б) – Температурная зависимость сопротивления одной из пленок в логарифмическом масштабе по сопротивлению от приведенной температуры. Зеленая сплошная линия – результат расчета с помощью теории QСС, красная пунктирная линия соответствует результату подгонки выражением для вихревого перехода БКТ (2) из [32, 33]. (с) – Зависимость критической температуры T_c (сплошные символы) и температуры перехода Березинского–Костерлица–Таулесса $T_{\text{BKТ}}$ (открытые символы) от характерного сопротивления R_* . Линии – предсказания в рамках фермионной модели подавления сверхпроводимости (3)

определенному в приближении среднего поля. Любой другой выбор характерного сопротивления приводит к зависимости $T_*(R_*)$, лежащей между вышеупомянутыми кривыми. При этом для $R_* = R_{\text{max}}$ наблюдается расхождение экспериментальных данных и результатов фермионной модели: критическая температура подавляется существенно медленнее, чем предсказывает теория.

Выбор R_t в качестве характерного сопротивления позволяет добиться наилучшего согласия экс-

периментальных данных и предсказаний фермионной модели подавления сверхпроводимости. Заметим, что температура перехода Березинского–Костерлица–Таулесса зануляется при ненулевом значении критической температуры, что характерно для бозонной модели. Таким образом, в исследуемой системе одновременно реализуются и бозонный и фермионный механизмы подавления сверхпроводимости.

Рассмотрим далее пленки, расположенные на изолирующей стороне D-SIT. Для них кривые сопротивления были перестроены в активационных координатах (см. рис. 4а). При температурах ниже 10 К

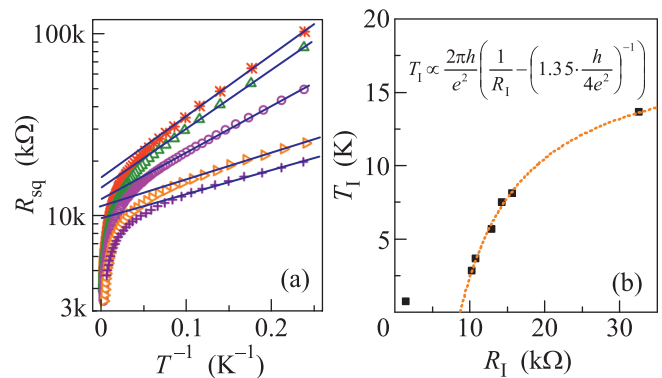


Рис. 4. (Цветной онлайн) Изолирующая сторона D-SIT. Символы соответствуют экспериментальным данным. (а) – Сопротивление пленок в аррениусовских координатах. Сплошные прямые – активационный закон (4). (б) Зависимость энергии активации T_I от коэффициента R_I . Штриховой линией показана эмпирическая кривая (5)

наблюдается хорошее согласие со свойственным для изоляторов законом Аррениуса

$$R(T) = R_I \exp\left(\frac{T_I}{T}\right). \quad (4)$$

По мере роста беспорядка энергия активации $E_I = k_B T_I$ монотонно увеличивается от 0.24 мэВ до 2.07 мэВ, что согласуется с экспериментальными результатами, полученными на тонких пленках нитрида титана TiN [15]. Откладывая зависимость T_I от префактора R_I (рис. 4б), мы обнаруживаем, что она имеет гиперболический характер

$$T_I \propto \frac{2\pi h}{e^2} \left(\frac{1}{R_I} - \frac{1}{R_{\text{trI}}} \right), \quad (5)$$

причем величина $R_{\text{trI}} = 1.35(h/4e^2)$ оказывается порядка кванта сопротивления для куперовских пар $h/4e^2$, что соответствует значению критического сопротивления R_c в бозонной модели. Заметим,

что сопротивление R_{trI} соответствует сопротивлению $R_{77} = 1.1(h/4e^2)$, что немного превышает пороговое значение сопротивления перехода сверхпроводник–изолятор в исследуемых пленках $R_{\text{SI}} = 6$ кОм. Кроме того, энергия активации самых низкоомных изоляторов, имеющих немонотонную зависимость $R(T)$, не ложится на кривую (5), что, по-видимому, связано с сильной неоднородностью транспортных свойств, возникающей на переходе сверхпроводник–изолятор.

Сопротивление R_{max} (сплошные символы на рис. 5) и коэффициент R_{I} (открытые символы на

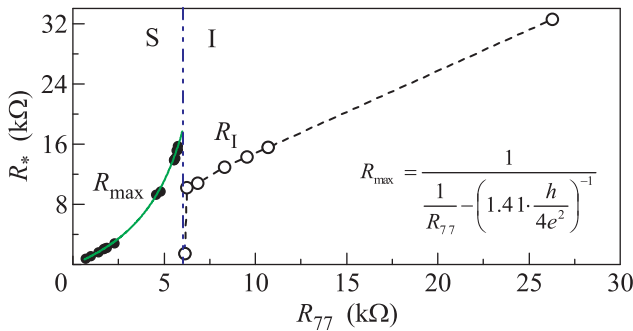


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость сопротивления в максимуме R_{max} и коэффициента R_{I} от степени беспорядка. Сплошная линия – эмпирическая зависимость (6), штрих-пунктирная – граница перехода SIT

рис. 5) растут с увеличением степени беспорядка. При этом в окрестности D-SIT величина R_{I} для изолирующих пленок оказывается существенно меньше значения R_{max} для сверхпроводящих. Отметим, что в данных координатах зависимость R_{I} близка к линейной, кроме значений R_{I} самых низкоомных изоляторов, имеющих немонотонную зависимость $R(T)$. Тогда как сопротивление R_{max} имеет гиперболическую зависимость

$$R_{\text{max}} = \frac{1}{R_{77}^{-1} - R_{\text{trS}}^{-1}}, \quad (6)$$

причем величина $R_{\text{trS}} = 1.41(h/4e^2)$ также порядка кванта сопротивления для куперовских пар, однако значительно превышает пороговое сопротивление перехода сверхпроводник–изолятор R_{SI} .

Таким образом, рост сопротивления в нормальном состоянии, обусловленный уменьшением толщины пленок, приводит к сдвигу максимума сопротивления в сторону низких температур от 10.6 до 3.1 К, монотонному уменьшению критической температуры сверхпроводящего перехода от 4.35 до 0.72 К и полному подавлению $T_{\text{ВКТ}}$ для пленок, находящихся на сверхпроводящей стороне перехода D-SIT; увеличению активационной энергии и коэффициента R_{I}

для пленок, находящихся на изолирующей стороне перехода D-SIT.

Исследования низкотемпературного транспорта выполнены при финансовой поддержке гранта президента РФ (МК-4628.2016.2), исследования структуры пленок NbTiN проводились при поддержке Российского научного фонда (проект # 14-22-00143). Изготовление пленок (Т.П.) и интерпретация данных (V.V.) были поддержаны U.S. Department of Energy, Office of Science, Basic Energy Sciences, Materials Sciences and Engineering Division.

1. A. I. Shal'nikov, Nature (London) **142**, 74 (1938).
2. A. M. Goldman and N. Marković, Physics Today **51**(11), 39 (1998).
3. В. Ф. Гантмахер, В. Т. Долгополов, УФН **180**, 1 (2010).
4. M. Strongin, R. S. Thompson, O. F. Kammerer, and J. E. Crow, Phys. Rev. B **1**, 1078 (1970).
5. А. М. Финкельштейн, ЖЭТФ **86**, 367 (1984).
6. A. Gold, Phys. Rev. A **33**, 652 (1986).
7. M. P. A. Fisher, G. Grinstein, and S. Grivin, Phys. Rev. Lett. **64**, 587 (1990).
8. J. M. Graybeal and M. R. Beasley, Phys. Rev. B **29**(7), 4167 (1984).
9. A. Yazdani and A. Kapitulnik, Phys. Rev. Lett. **74**, 3037 (1995).
10. S. Okuma, T. Terashima, and N. Kokubo, Phys. Rev. B **58**, 2816 (1998).
11. A. F. Hebard and, M. A. Paalanen, Phys. Rev. Lett. **65**, 927 (1990).
12. D. Shahar, Z. Ovadyahu, and A. M. Goldman, Phys. Rev. B **46**, 10917 (1992).
13. V. Gantmakher, M. V. Golubkov, V. T. Dolgoplov, G. E. Tsydynzhapov, and A. A. Shashkin, Physica B **284–288**, 649 (2000).
14. E. Bielejec, J. Ruan, and W. Wu, Phys. Rev. B **63**, 100502 (2001).
15. Т. И. Батурина, А. Ю. Миронов, В. М. Винокур, М. Р. Бакланов, and С. Strunk, Phys. Rev. Lett. **99**, 257003 (2007).
16. M. V. Feigelman, L. B. Ioffe, V. E. Kravtsov, and E. Cuevas, Annals of Physics **325**, 1390 (2010).
17. Т. И. Батурина and В. М. Винокур, Annals of Physics **331**, 236 (2013).
18. J. R. Gavaler, M. A. Janocko, A. Patterson, and C. K. Jones, J., Appl. Phys. **42**(1), 54 (1971).
19. J. Jesudasan, M. Mondal, M. Chand, A. Kamlapure, S. Kumar, G. Saraswat, V. C. Bagwe, V. Tripathi, and P. Raychaudhuri, AIP Conf. Proc. **1349**, 923 (2011).
20. M. Mondal, A. Kamlapure, M. Chand, G. Saraswat, S. Kumar, J. Jesudasan, L. Benfatto, V. Tripathi, and P. Raychaudhuri, Phys. Rev. Lett. **106**, 047001 (2011).

21. R. W. Simon, B. J. Dalrymple, D. Van Vechten, W. W. Fuller, and S. A. Wolf, *Phys. Rev. B* **36**, 1962 (1987).
22. I. S. Beloborodov, A. V. Lopatin, V. M. Vinokur, and K. B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 469 (2007)
23. L. G. Aslamasov and A. I. Larkin, *Phys. Lett. A* **26**, 238 (1968).
24. K. Maki, *Prog. Theor. Phys.* **39**, 897 (1968).
25. R. S. Thompson, *Phys. Rev. B* **39**, 327 (1970).
26. S. Hikami, A. I. Larkin, and Y. Nagaoka, *Prog. Theor. Phys.* **63**, 707 (1980).
27. B. L. Altshuler, A. G. Aronov, and P. A. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 19, 1288 (1980).
28. Б. Л. Альтшулер, А. А. Варламов, М. Ю. Рейзер, *ЖЭТФ* **84**(6), 2280 (1983).
29. В. Л. Березинский, *ЖЭТФ* **61**(3), 1144 (1971).
30. J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, *J. Physics C: Solid State Physics* **6**, 1181 (1973).
31. J. M. Kosterlitz, *J. Physics C: Solid State Physics* **7**, 1046 (1974).
32. B. I. Halperin and D. R. Nelson, *J. Low Temperature Physics* **36**, 599 (1979).
33. S. Doniach and B. A. Huberman, *Phys. Rev. Lett.* **42**(17), 1169 (1979).
34. M. J. Buckingham and W. M. Fairbank, *Progress in Low Temperature Physics* **3**, 80 (1961).