ELECTRONIC STRUCTURE AND PROPERTIES

PACS numbers: 72.10.Fk, 73.63.-b, 74.78.Db, 85.30.Mn

Вплив температури на від’ємну диференційну провідність N-типу у вольт-амперних характеристиках металевих гетероструктур з надпровідними електродами

А. П. Шаповалов^{*,**}, О. С. Житлухіна^{***,****}

^{*}Інститут металофізики ім. Г. В. Курдюмова НАН України,
бульв. Академіка Вернадського, 36,
03142 Київ, Україна

^{**}Інститут надтвердих матеріалів ім. В. М. Бакуля НАН України,
вул. Автозаводська, 2,
04074 Київ, Україна

^{***}Донецький фізико-технічний інститут ім. О. О. Галкіна НАН України,
просп. Науки, 46,
03028 Київ, Україна

^{****}Донецький національний університет імені Василя Стуса,
вул. 600-річчя, 21,
21021, Вінниця, Україна

Тунельні дворівневі системи визначають низькоенергетичні властивості аморфних твердих тіл, зокрема, ефект декогеренції у квантових нанорозмірних пристроях на основі надпровідних металів. Основні характеристики дворівневих систем, як правило, добре описує стандартна тунельна модель. У даній роботі використано таку модель для опису температурної

Corresponding author: Andriy Petrovych Shapovalov
E-mail: shapovalovap@gmail.com

^{*}G. V. Kurdyumov Institute for Metal Physics, N.A.S. of Ukraine,
36 Academician Vernadsky Blvd., UA-03142 Kyiv, Ukraine

^{**}V. M. Bakul Institute for Superhard Materials, N.A.S. of Ukraine,
2, Avtozavodska Str., UA-04074 Kyiv, Ukraine

^{***}Donetsk Institute for Physics and Engineering Named After O. O. Galkin, N.A.S. of Ukraine,
46 Nauky Ave., UA-03028 Kyiv, Ukraine

^{****}Vasyl' Stus Donetsk National University,
21 600-Richchya Str., UA-21021 Vinnytsia, Ukraine

Citation: A. P. Shapovalov and O. S. Zhytlukhina, Temperature Effect on Negative N-Type Differential Conductivity in Current–Voltage Characteristics of Metallic Heterostructures with Superconducting Electrodes, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, 42, No. 9: 1187–1196 (2020) (in Ukrainian), DOI: [10.15407/mfint.42.09.1187](https://doi.org/10.15407/mfint.42.09.1187).

поведінки вольт-амперних характеристик гібридних структур, що складаються з надпровідних плівок з неупорядкованими кремнієвими прошарками, допованими нанорозмірними металевими гранулами з вольфраму. Результати розрахунків добре узгоджуються з нашими експериментальними даними для переходів MoRe/Si(W)/MoRe.

Ключові слова: тришарові наноструктури, надпровідні електроди, доповані кремнієві прошарки, дворівневі тунельні системи, від'ємна диференційна провідність.

Two-level tunnelling systems determine low-energy properties of amorphous solids, in particular, the decoherence effect in quantum nanoscale devices based on superconducting metals. The main characteristics of two-level systems, as a rule, are well described by the standard tunnelling model. In the paper, we use the model to describe temperature effect on current–voltage characteristics of hybrid structures made of superconducting films with disordered silicon interlayers doped with nanoscale tungsten granules. Results of the calculations are in good agreement with our experimental data for MoRe/Si(W)/MoRe junctions.

Key words: three-layered nanostructures, superconducting electrodes, doped silicon interlayers, two-level tunnelling systems, negative differential conductance.

(Отримано 24 березня 2020 р.)

1. ВСТУП

Низькотемпературна фізика неупорядкованих та аморфних матеріалів стала однією з найзагадковіших та складних проблем у фізиці конденсованого стану [1, 2]. Добре відомо, що за наднизьких температур такі системи виявляють фізичні характеристики, які не тільки якісно відрізняються від властивостей кристалічних твердих тіл, але й демонструють неабиякий ступінь універсальності [2–4]. Така поведінка аморфних твердих тіл пояснюється за допомогою моделі тунельних дворівневих систем [5, 6], яка базується на припущенні наявності атомів або груп атомів з двома майже виродженими енергетичними конфігураціями, що тунелюють між собою квантовомеханічним чином. Цей підхід зазвичай називають стандартною тунельною моделлю. У нашій попередній роботі [7] ми продемонстрували наявність дворівневих систем у бар'єрному шарі допованого і неупорядкованого кремнію між двома надпровідними електродами. Наявність таких систем у кремнієвому прошарку доведена шляхом порівняння експериментальних вольт-амперних (I – V) кривих з відповідними теоретичними розрахунками. Виявлено, що резонансні стани у перехідній області між двома металевими електродами призводять до появи від'ємної диференційної провідності в I – V характеристиках. Проте роль надпровідних шарів у

статті [7] залишалася невиявленою. У даній роботі ми наводимо температурні залежності I – VI кривих, які порівнювали з теорією, запропонованою раніше [7]. Переконливий збіг теорії з експериментом є безумовним доказом адекватності стандартної тунельної моделі у нашому випадку. Наприкінці статті ми обговорюємо, яким чином зникнення надпровідності в обкладинках за температур, вищих критичної, може впливати на форму вольт-амперних кривих, зокрема, на величину резонансного рівня, його ширину та інші параметри задачі. Показано, що незважаючи на незначні, на перший погляд, варіації температури, ці зміни є радикальними.

2. ТЕОРЕТИЧНА МОДЕЛЬ

У даному розділі ми наводимо теоретичний підхід до ефекту від'ємної диференційної провідності, який базується на припущенні про невпорядковану структуру тунельного бар'єра у наших тришарових гібридних структурах [8] і наявності у ньому локалізованих дворівневих систем, які саме і визначають величину струму, що протікає через відповідний транспортний канал [9]. Відповідно до нашого припущення [7], в основному електронному стані такі структури мають дуже маленький опір, а у збудженому стані їх опір стає вже значним. Теорія цього явища базується на ефекті резонансного тунелювання крізь напівпровідник з виродженим збудженим станом домішкових центрів у ньому [10].

Як аргументовано у роботі [11], розподіл імовірностей тунельного проходження заряджених частинок через неоднорідне середовище $\rho(D)$ є бімодальною функцією з двома максимумами, коли $D = 0$ або $D = 1$. Наявність «відкритих» каналів з $D \leq 1$ у разі напівпровідникового прошарку з металевими нанорозмірними ґранулами обумовлено присутністю особливих квантових траєкторій, що об'єднують локалізовані стани з близькими енергетичними рівнями, розташованими приблизно на однакових відстанях один від одного. У випадку руху вздовж таких траєкторій має місце взаємне збільшення результуючої амплітуди когерентних електронних хвиль у разі їх накладанні одна на одну (конструктивна інтерференція), внаслідок чого імовірність тунелювання збільшується з ростом електронної енергії аж до значень порядку одиниці. На практиці цей ефект проявляється у вигляді максимуму диференційної провідності $G(V) = dI(V)/dV$ за $V = V_{res}$ шириною ΔV , яка визначається розкидом енергетичних рівнів і відстаней між нанорозмірними ґранулами

$$G_0(V) = \frac{e^2}{h} \frac{\Delta V^2(T)}{[V - V_{res}(T)]^2 + \Delta V^2(T)}, \quad (1)$$

де e — елементарний заряд, h — стала Планка, параметри задачі V_{res} і ΔV залежать від температури навколишнього середовища T . Зауважимо, що у роботі [7] ми знехтували впливом температури на спектр диференційної провідності.

Якщо $V = V_{th}(T)$, де $V_{th}(T)$ — критичне значення напруги зриву, яке залежить від температури, у вольт-амперних характеристиках тришарових гібридних структур спостерігається різке падіння диференційної провідності від позитивних до негативних величин похідної $G(V) = dI(V)/dV$, див. нижче. Пояснити цей ефект можна за допомогою гіпотези про наявність дворівневої системи у «відкритому» транспортному каналі з $D \leq 1$. Фізична природа подібних об'єктів, яка спостерігається у багатьох твердотільних структурах, залишається загадковою, як це вже зазначено вище. Математично зрозуміло, що вони є двома подібними конфігураціями з потенціальним бар'єром між ними, здолавши який система переходить з одного рівня на інший. Гібридизація цих станів призводить до розщеплення двох вироджених станів на величину $V_{th}(T)$.

Як показано у роботі [7], для того, щоб описати вольт-амперну криву з від'ємним диференціальним опором, подібну до тих, які одержано у роботі [9], наведену вище модель дворівневої системи необхідно доповнити ще одним ступенем свободи. Згідно [10] слід припустити, що основний (0) стан дворівневої системи невироджений, у той час як збуджений (1) стан з більшою енергією складається з $N > 1$ енергетично еквівалентних станів. Крім того, будемо вважати, що в основному стані диференціальна провідність $G(V) \approx G_0(V)$, а у збудженому — $G(V) \approx G_1(V) = \text{const}$. Тоді повний струм через обговорюваний транспортний канал

$$I(V) = I_0(V)n_0(V) + I_1(V)n_1(V),$$

де $n_0(V)$ і $n_1(V)$ — відповідні числа заповнення, $n_0(V) + n_1(V) = 1$, $n_0(V) = 1$ для $eV < V_{th}(T)$, $I_1(V) = G_1V$.

Таким чином, маємо

$$G(V) = \frac{dI(V)}{dV} = G_0(V) + [G_1 - G_0(V)]n_1(V) + [G_1V - I_0(V)]\frac{dn_1(V)}{dV}. \quad (2)$$

Принцип детальної рівноваги, який полягає у рівності прямого і зворотного переходів між дискретними станами системи, дозволяє визначити числа заповнення $n_{0(1)}(V)$. Для $N > 1$ еквівалентних збуджених станів залежність від напруги величини $n_1(V)$ має вигляд [10]

$$n_1(V) = \frac{N(e|V| - V_{th})}{N(e|V| - V_{th}) + (e|V| + 3V_{th})} \theta(e|V| - V_{th}). \quad (3)$$

Тут $\theta(x)$ — функція Хевісайда.

Скориставшись формулами (1)–(3), ми можемо розрахувати залежність диференційної провідності обговорюваної гетероструктури від напруги для значень п'яти залежних від температури параметрів V_{res} , V_{th} , ΔV , G_1 та N . Далі ми наводимо результати чисельних розрахунків для різних значень цих підігнаних параметрів і детально аналізуємо вплив того чи іншого параметра на форму вимірюваної залежності $G(V)$.

3. ЕКСПЕРИМЕНТ ТА ЧИСЕЛЬНІ РОЗРАХУНКИ

У експериментах плівки MoRe товщиною 100 нм із 45% Re ми використовували як надпровідні (S) електроди. Надпровідні властивості стопу Mo–Re виявлено біля 50 років тому у результаті систематичних досліджень критичних температур надпровідного переходу T_c у перехідних металах. Встановлено, що максимальна T_c у об'ємних зразках та плівках Mo–Re досягається у фазі A15 і може бути навіть більшою за 15 К. Розчинність інших елементів, зокрема, Оксигену в системі Mo–Re низька, і такі домішки не пригнічують надпровідність у даному стопі. Природний оксид стопу Mo–Re вирощують до товщини не більше 0,5 нм і це набагато менше за товщину оксидів на поверхнях Mo і Re. Для того, щоб створити тунельний перехід на плівці Mo–Re, необхідно покрити цей матеріал шаром алюмінію, який після цього окислюється. Таким чином, завдяки порівняно хорошим механічним властивостям, таким як твердість і механічна міцність, цей матеріал досить придатний для гібридних металевих гетероструктур [12]. Шари MoRe наносили на діелектричні підложжя Al_2O_3 за температури навколишнього середовища шляхом магнетронного розпорошення на постійному струмі у вакуумній камері з аргонем під тиском 1 Па. Нижче критичної температури T_c близько 7 К вони переходили у надпровідний стан. Наноструктурований прошарок Si(W) одержано випаровуванням гібридної мішені, яка складалася із Силіцію і тонких вольфрамових дрітків, розсіяних по поверхні кремнію. Концентрація вольфраму n_w у суміші змінювалася від 0 до 10 ат.%. Для фіксованого n_w значення товщини Si(W) прошарку $d_{Si(W)}$ змінювалася з 15 до 30 нм.

Розміри тришарових зразків MoRe/допований Si/MoRe коливались від величин 50×50 до 100×100 мкм². Діапазон температур для вимірів електричних характеристик становив від 4,2 до 6,5 К. Для $n_w \sim 4$ ат.% спостерігалися криві $I-V$ з різкими піками за порогового значення зміщення напруги $V_{th}(T)$, див. криві $I-VI$ на рис. 1 та похідні $dI(V)/dV$ на рис. 2. Більш докладний опис експерименту наведено у роботі [13]. Знайдені нами експериментальні залежності струму від напруги використовували надалі для визначення спектрів диференційної провідності MoRe/Si(W)/MoRe зразків. Для цього ми здиференційовані дані (рис. 2) коректували шляхом порів-

няння з відповідними виміряними кривими.

Рис. 1. Вольт-амперні характеристики тришарового MoRe/Si(W)/MoRe зразка, $d_{\text{Si(W)}} = 30$ нм і $n_{\text{W}} \approx 4$ ат.%, виміряні за температур вищих 4,2 К, які демонструють суттєві зміни у кривих I–VI, незважаючи на малі температурні варіації.

Fig. 1. Current-voltage characteristics of a three-layer MoRe/S(W)/MoRe sample, $d_{\text{Si(W)}} = 30$ nm and $n_{\text{W}} \approx 4$ at.%, measured at the temperatures above 4.2 K, showing significant changes in the curves I–VI, despite small temperature variations.

Рис. 2. Спектри диференційної провідності тришарового MoRe/Si(W)/MoRe зразка, $d_{\text{Si(W)}} = 30$ нм і $n_{\text{W}} \approx 4$ ат.%, за температур вищих 4,2 К.

Fig. 2. Differential conductance spectra of a three-layer MoRe/Si(W)/MoRe sample, $d_{\text{Si(W)}} = 30$ nm and $n_{\text{W}} \approx 4$ at.%, at the temperatures above 4.2 K.

Одержані таким чином спектри провідності наведено на рис. 2.

Наводимо далі результати порівнянь теорії з експериментом для трьох температур 4,2 К, 4,5 К і 5,0 К, які свідчать про адекватність запропонованого теоретичного підходу для опису впливу температури на експериментальні вольт-амперні характеристики (рис. 3–5).

Порівняння вимірних і розрахованих кривих вказує на стійку тенденцію зниження розрахункових параметрів V_{res} і V_{th} , до того ж співвідношення між ними $V_{res} < V_{th}$ залишається незмінним. На наш погляд, це означає, що пригнічення надпровідності з ростом температури тягне за собою зміну резонансних умов на межі надпровідника і напівпровідника, що має, зокрема, братися до уваги для аналізу відповідних результатів для зв'язаних станів з нетривіальними властивостями, зокрема, у випадку майоранівських станів [14].

4. ВИСНОВКИ

Постійний прогрес у мініатюризації напівпровідникової техніки, зокрема, комп'ютерної пам'яті на нанорозмірному рівні потребує нових електронних пристроїв, здатних масштабуватись до надма-

Рис. 3. Залежність диференційної провідності від напруги для MoRe/Si(W)/MoRe переходу (точкова лінія) за вмісту молібдену $n_W \approx 4$ ат.% в аморфному кремнієвому бар'єрі товщиною $d_{Si(W)} = 30$ нм та температури 4,2 К. Суцільна лінія представляє наші модельні розрахунки за наступних параметрів: $V_{res} = 275$ мВ, $V_{th} = 300$ мВ, $\Delta V = 60$ мВ, $G_1 = 0,01$ Ом⁻¹, $N = 20$.

Fig. 3. Differential conductance—versus-voltage characteristics of a MoRe/Si(W)/MoRe junction (dotted line) at molybdenum content $n_W \approx 4$ % in an amorphous silicon barrier of the thickness $d_{Si(W)} = 30$ nm at the temperature 4.2 K. Solid lines represent our model calculations for the following parameters: $V_{res} = 275$ mV, $V_{th} = 300$ mV, $\Delta V = 60$ mV, $G_1 = 0.01$ Ohm⁻¹, $N = 20$.

лих розмірів. У нашій роботі ми запропонували та реалізували концепцію нового елемента для наноелектроніки на основі багатошарової структури з металевими електродами у надпровідному стані та композитним кремнієвим прошарком нанометрової товщини з вольфрамовими гранулами. На нашу думку, ця структура має великий потенціал для виготовлення функціональних пристроїв, що демонструють від'ємну диференційну провідність і водночас володіють інтеграцією високої щільності. Аналіз кривих диференційної провідності від напруги за різних температур показав, що це явище можна успішно описати за допомогою простої моделі дворівневих систем з надзвичайно великими параметрами асиметрії, як це передбачалося раніше у роботі [10].

Разом з тим, слід зазначити, що запропонована інтерпретація залишає невирішеним питання мікроскопічного походження ефекту від'ємної диференційної провідності у наших зразках. Певну ідею, однак, можна одержати за допомогою аналізу температурної поведінки запропонованих зразків, що викладено вище. Встановлено, що ефект від'ємної диференційної провідності у MoRe/Si(W)/MoRe переходах зникає з підвищенням температури понад T_c .

Рис. 4. Залежність диференційної провідності від напруги для MoRe/Si(W)/MoRe переходу (точкова лінія) за вмісту вольфраму $n_W \approx 4$ ат.% в аморфному кремнієвому бар'єрі товщиною $d_{\text{Si(W)}} = 30$ нм та температури 4,5 К. Суцільна лінія представляє наші модельні розрахунки за наступних параметрів: $V_{\text{res}} = 255$ мВ, $V_{\text{th}} = 270$ мВ, $\Delta V = 60$ мВ, $G_1 = 0,01$ Ом $^{-1}$, $N = 20$.

Fig. 4. Differential conductance—versus-voltage characteristics of a MoRe/Si(W)/MoRe junction (dotted line) at molybdenum content $n_W \approx 4$ % in an amorphous silicon barrier of the thickness $d_{\text{Si(W)}} = 30$ nm at the temperature 4.5 K. Solid lines represent our model calculations for the following parameters: $V_{\text{res}} = 255$ mV, $V_{\text{th}} = 270$ mV, $\Delta V = 60$ mV, $G_1 = 0.01$ Ohm $^{-1}$, $N = 20$.

Отже, специфічний мікроскопічний механізм, який викликає падіння струму за певної напруги і відсутній у нормальному металевому стані, має бути обумовлений процесами з достатньо низькою енергією. Цілком природно пов'язувати різкі зміни провідності транспортного каналу із захопленням електронних збуджень у неглибоких локальних станах, які можуть утворитися на межі надпровідника й ізолятора [15]. Якщо контактний метал знаходиться в нормальному стані ($T > T_c$), то низькоенергетичні електрони, що потрапляють на межу з ізолятором, можуть легко тунелювати у метал, реалізуючи короткотривалий резонанс. Навпаки, для $T < T_c$ тривалість життя станів нижче енергетичної щільності суттєво збільшується, оскільки локалізований електрон може змінити свій просторовий стан лише шляхом тунелювання в інший підцилінний стан завдяки андреєвським процесам [16]. Згідно з роботою [16] ми будемо називати такі локалізовані стани біля межі надпровідника та ізолятора андреєвськими флуктуаторами. Вважаємо, що їх присутність є основним джерелом явища від'ємної диференційної провідності у наших зразках.

Переходи, які досліджували у цій роботі, є сумісними з оптичною

Рис. 5. Залежність диференційної провідності від напруги для MoRe/Si(W)/MoRe переходу (точкова лінія) за вмісту вольфраму $n_W \approx 4$ ат.% в аморфному кремнієвому бар'єрі товщиною $d_{Si(W)} = 30$ нм і температури 5 К. Суцільна лінія представляє наші модельні розрахунки за наступних параметрів: $V_{res} = 242$ мВ, $V_{th} = 243$ мВ, $\Delta V = 60$ мВ, $G_1 = 0,01$ Ом⁻¹, $N = 20$.

Fig. 5. Differential conductance—versus-voltage characteristics of a MoRe/Si(W)/MoRe junction (dotted line) at molybdenum content $n_W \approx 4$ % in an amorphous silicon barrier of the thickness $d_{Si(W)} = 30$ nm at the temperature 5 K. Solid lines represent our model calculations for the following parameters: $V_{res} = 242$ mV, $V_{th} = 243$ mV, $\Delta V = 60$ mV, $G_1 = 0.01$ Ohm⁻¹, $N = 20$.

літографією і готові до їх інтеграції у мікро- та нанорозмірні пристрої. Їхні властивості можуть бути покращені за допомогою йонної імплантації, яку широко застосовують у напівпровідниковій індустрії, шляхом введення допантів з номінальною глибиною та кількістю, змінюючи енергію домішок та час. Ключовим завданням для майбутніх потенційних застосувань є точний контроль над позиціями домішкових центрів з метою контролю діапазону від'ємної диференційної провідності та збільшення відношення пік–долина у вольт-амперних кривих.

Досліджена нами температурна залежність обговорюваного явища від'ємної диференційної провідності свідчить про суттєвий вплив надпровідника на зв'язані стани у контакті з напівпровідником. Викладені висновки слід враховувати для аналізу відповідних результатів для інших зв'язаних станів з нетривіальними властивостями, таких як майоранівські [14].

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА—REFERENCES

1. A. J. Leggett, *Physica B*, **169**: 322 (1991).
2. R. O. Pohl, X. Liu, and E. Thompson, *Rev. Mod. Phys.*, **74**: 991 (2002).
3. R. C. Zeller and R. O. Pohl, *Phys. Rev. B*, **4**: 2029 (1971).
4. W. A. Phillips, *Rep. Prog. Phys.*, **50**: 1657 (1987).
5. P. W. Anderson, B. I. Halperin, and C. M. Varma, *Philos. Mag.*, **25**: 1 (1972).
6. W. A. Phillips, *J. Low-Temp. Phys.*, **7**: 351 (1972).
7. A. Shapovalov, V. Shaternik, O. Suvorov, E. Zhitlukhina, and M. Belogolovskii, *Appl. Nanosci.*, **8**: 1025 (2018).
8. V. Shaternik, M. Belogolovskii, T. Prikhna, A. Shapovalov, O. Prokopenko, D. Jabko, O. Kudrja, O. Suvorov, and V. Noskov, *Physics Procedia*, **36**: 94 (2012).
9. V. E. Shaternik, A. P. Shapovalov, A. V. Suvorov, N. A. Skoryk, and M. A. Belogolovskii, *Low. Temp. Phys.*, **42**: 426 (2016).
10. A. Halbritter, P. Makk, Sz. Csonka, and G. Mihály, *Phys. Rev. B.*, **77**: 075402 (2008).
11. M. Belogolovskii, E. Zhitlukhina, V. Lacquaniti, N. De Leo, M. Fretto, and A. Soso, *Low Temp. Phys.*, **43**: 756 (2017).
12. V. Tarenkov, A. Dyachenko, V. Krivoruchko, A. Shapovalov, and M. Belogolovskii, *J. Supercond. Nov. Magn.*, **33**: 569 (2020).
13. V. Shaternik, A. Shapovalov, and O. Suvorov, *Low Temp. Phys.*, **43**: 877 (2017).
14. V. Mourik, K. Zuo, S. M. Frolov, S. R. Plissard, E. P. A. M. Bakkers, and L. P. Kouwenhoven, *Science*, **336**: 1003 (2012).
15. L. Faoro and L. B. Ioffe, *Phys. Rev. Lett.*, **96**: 047001 (2006).
16. L. Faoro, J. Bergli, B. L. Altshuler, and Y. M. Gaplerin, *Phys. Rev. Lett.*, **95**: 046805 (2005).