# 低 温 物 理

DIWEN WULI

第 1 卷　　第 1 期

1979

低温物理编辑部编辑
科学出版社出版

813

China

## 《低温物理》征稿简则

一、本刊以马列主义、毛泽东思想为指导，贯彻“百花齐放、百家争鸣”的方针。重点报道我国广大科技工作者从事低温研究工作的理论和实验成果。通过互相交流，促进我国低温研究工作的发展，更好地推动我国的科学技术事业。

二、本刊是以报道、交流低温领域科研成果为主的综合性刊物（季刊）。刊登的内容有：1. 低温物理和低温技术的研究成果（包括理论和实验）；2. 低温在新技术领域的应用；3. 低温领域研究述评，国际发展动态；4. 低温物理和低温技术知识的介绍；5. 其它与低温研究有关的论著。

三、读者对象主要是从事低温领域内工作的科技工作者、高等学校教师以及有关学科的科技人员。

四、来稿一律用稿纸（小方格纸）缮写清楚。插图要用制图纸绘制，照片要黑白分明。

五、来稿一般不予退回，请作者自留底稿。

六、来稿请寄：安徽省合肥市中国科学技术大学《低温物理》编辑部。

电话号码：合肥市 6671

电报挂号：合肥市 4430


**低 温 物 理**

**（季刊）**

一九七九年　第1卷　第1期

编　辑　《低温物理》编辑部
合肥中国科学技术大学

出　版　科学出版社
北京朝阳门内大街137号

印　刷　中国科学院印刷厂

发　行　全国新华书店

一九七九年三月出版

统一书号：13031·1017　本社书号：1432·13-3

定价：0.63 元

DS94/30

# 低 温 物 理

第1卷 第1期 1979年3月

## 目 录

创刊词……（1）
表面对 $V_3Si$ 电子态密度的影响……陶瑞宝（2）
薄膜隧道结的漏洞分析和金相筛选法……孟小凡、郭维新、崔广霁（9）
DR100-10 稀释制冷机研制……冉启泽、钱永嘉、朱元贞（18）
超导磁体保护装置……方国生（34）
低温电容液面计……阮耀钟、李贵和、黄桂石、黄 伟（44）
定点液面指示仪的研制……上海科技大学低温超导组（51）
$Pd_{73}Si_{20}Cr_7$ 合金的磁阻效应……赵忠贤、张殿琳、林淑媛（54）
铌钛铜合金的多因子实验设计法研究…长沙矿冶研究所新材料研究室四组（57）
基准铂电阻温度计在氧沸点的比对……高鸿春、吴必勤（64）
多引线低温真空密封接头的制作……冉启泽（70）
用普通机工泵改装成 $He^3$ 用机工泵……
……中国科学院物理研究所五室稀释制冷机研制组（71）

### 研 究 简 报

强耦合超导体临界温度的上限……吉光达、蔡俊道（75）
在 Josephson 隧道结中磁场对微波感应台阶高度影响的讨论……戴远东（79）
低温铑铁电阻温度计试制简报……化学工业部光明化工研究所（82）
国产 GaAs 二极管的低温性能……王桂蓉、毕 文（84）

### 消 息 报 道

第十五届国际低温物理会议在法国召开……张其瑞（86）
第二届全国高温超导性学术讨论会在成都召开……李毕友（87）
超导隧道效应学术讨论会在宁召开……会议秘书组供稿（88）

此为试读，需要完整PDF请访问：www.ertongbook.com
China

53.813
299

# 创　刊　词

为了繁荣社会主义科学技术事业，促进伟大祖国的四个现代化；为了在低温领域及与其相关的科学技术领域内，检阅科研成果，推广先进技术，活跃学术思想，开展经验交流，同时帮助读者了解国内、外发展动向，我们创办了《低温物理》这一学术刊物。本刊业经中华人民共和国国家科委批准，从1979年第一季度起开始由科学出版社出版，先在国内发行。

本刊以马列主义、毛泽东思想为指导，贯彻“百花齐放、百家争鸣”的方针，既重视发展基础理论，也注意推动技术应用。强调理论与实际相联系、鼓励不同学科间的相互渗透，既提倡解放思想，破除迷信，勇于创新，又要求严肃认真的科学态度，树立正确的学风。

我们殷切希望全国从事低温研究的广大科技工作者、教师、学生及其他关心低温事业发展的同志共同关心本刊的成长，踊跃投稿，积极提出批评建议，充分利用本刊作为我们自己的学术园地。让我们携起手来，在华主席为首的党中央领导下，为完成新时期的总任务，并肩前进！

中国科学院电子学研究所
1979.5.
1107816

第1卷 第1期 低温物理 Vol. 1 No. 1
1979年3月 DIWEN WULI March, 1979

DS94/30

# 表面对 $V_3Si$ 电子态密度的影响*

陶瑞宝
(复旦大学)

**提要**

本文从 $V_3Si$ 的准一维链模型出发，用双时格林函数方法，正确地计算了链的理想中断所引起的自由表面、非理想中断的表面以及含杂的自由表面对电子态密度的影响，分析了可能提高 $V_3Si$ 费米面附近态密度的物理条件，讨论了超细微颗粒化提高 $V_3Si$ 超导转变温度的可能性。

## 一、引言

$V_3Si$ 是属 $A$-15 结构的化合物，这类化合物有些具有很高的超导转变温度．准一维的微观理论[1,2]，还算得上是比较成功的理论，它基本上可解释这类化合物的许多反常特性[3]，虽然准一维电子谱还缺乏理论依据[4]．本文就是在准一维模型的基础上，讨论一下表面对一维电子谱的影响．

随着超细颗粒是否能提高超导转变温度的问题的提出[5]，研究表面对费米面附近电子能态密度 $\rho(E_F)$、单声子态密度、电子-声子耦合矩阵元、结构相变等的影响，就显得很有必要．这是因为在超细颗粒情况下，露在表面的原胞占相当大的比重，如线度为 50 Å 的 $V_3Si$ 晶粒，露在表面的原胞数可占约 50% 左右．由于表面的存在，以及表面所处的环境可以很大地改变原来块状时的物理性质．本文将从边界条件的形式来讨论表面对一维电子谱的影响，这种处理方式仅适用于颗粒不是太小的情况．

由于我们所感兴趣的是单电子态密度，而不是体系的总能态密度（因为超导特性将只与单电子态密度有关），因此最好选用单粒子双时格林函数． 如定义推迟双时格林函数：

$$G_k(t, t') = \langle\langle \hat{a}_k(t) | \hat{a}_k^+(t') \rangle\rangle \equiv -i\theta(t-t')\langle[\hat{a}_k(t)\hat{a}_k^+(t') + \hat{a}_k^+(t')\hat{a}_k(t)]\rangle$$

在能量表象中记为 $G_k(E) = \langle\langle \hat{a}_k | \hat{a}_k^+ \rangle\rangle_E$，式中 $\hat{a}_k$ 和 $\hat{a}_k^+$ 是电子动量为 $k$ 的湮没和产生算符，并忽略了电子自旋指标，式中 $\langle[\hat{a}_k(t)\hat{a}_k^+(t') + \hat{a}_k^+(t')\hat{a}_k(t)]\rangle$ 表示热力学平均，$\theta(x)$ 表示阶跃函数．由熟知的公式，可得体系的电子密度（$\Omega$ 为链长一体积）：

$$n = \frac{1}{\Omega}\sum_k \langle a_k^+ a_k \rangle$$
$$= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{e^{\beta E}+1} \cdot \frac{1}{\pi} I_m \frac{1}{\Omega}\sum_k G_k(E - i0^+) dE$$

* 1978年9月20日收到．

故 $\sum_k \frac{1}{\pi} I_m G_k(E - i0^+)$ 代表能量为 $E$ 的单粒子态密度：

$$\rho(E) = \frac{1}{\pi} I_m \sum_k G_k(E - i0^+) \tag{1}$$

## 二、“半无限长”理想表面

这里我们定义“无限长”链是指具有 $N$ 个原子加上周期性边界条件．$V_3Si$ 的 V 原子链中的 $d$ 电子是具有较明显的定域特性，所以可近似地用最近邻紧束缚哈密顿来表征此一维电子体系，熟知为：

$$\begin{aligned}\hat{H}_0 &= \frac{1}{2}\sum_{(i,j)} I(i,j)\psi_i^+\psi_j = \beta\sum_k \cos ka\,\hat{a}_k^+\hat{a}_k \\ &\equiv \sum_k \varepsilon_k \hat{a}_k^+\hat{a}_k\end{aligned} \tag{2}$$

式中 $I(i,j)$ 是第 $i$ 和第 $j$ 个原子位置上定域 $d$ 电子之间的相互作用，求和限于最近邻的对之间．$a$ 为晶格常数，$\beta$ 为作用强度，取 $\beta = 1$，$a = 1$ 的单位．现在设想第 0 个 $d$ 电子和第 $(-1)$ 个 $d$ 电子之间的耦合完全中断，结果原来的“无限长”链断成具有自由表面的两个“半无限”长链，这样的中断引进的附加势为：

$$\begin{cases}\hat{V}_I = -\frac{1}{2}\psi_0^+\psi_{-1} - \frac{1}{2}\psi_{-1}^+\psi_0 \\ \quad = -\sum_{k_1k_2} g_{k_2}^*\hat{a}_{k_1}^+\hat{a}_{k_2} - \sum_{k_1k_2} g_{k_1}\hat{a}_{k_1}^+\hat{a}_{k_2} \\ g_k^* = \frac{1}{2}e^{ik}\end{cases} \tag{3}$$

这个体系的哈密顿为

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}_I \tag{4}$$

由这样的哈密顿，可以正确求得单粒子推迟格林函数(对 $k$ 求和)：

$$\sum_k \langle\langle \hat{a}_k | \hat{a}_k^+ \rangle\rangle_E = \Gamma_0 - \frac{2(1+\Gamma_1)}{\Delta}\varphi_1 + \frac{\Gamma_0}{2\Delta}\varphi_0$$

式中 $\Gamma_0$, $\Gamma_1$, $\Delta$, $\varphi_0$, $\varphi_1$ 定义如下，并由附录计算得：

$$\Gamma_0 = \sum_k G_0(k) = \sum_k \frac{1}{E - \cos k} = \frac{Ni}{\sqrt{1-E^2}}$$

$$\Gamma_1 = \frac{1}{N}\sum_k G_0(k) g_k^* = -\frac{1}{2} + \frac{E}{2\sqrt{1-E^2}}i$$

$$\Delta = (1+\Gamma_1)^2 - \frac{\Gamma_0^2}{4} = \frac{1}{2}\left\{1 + \frac{E}{\sqrt{1-E^2}}i\right\} = 1 + \Gamma_1$$

$$\begin{aligned}\varphi_0 &= \frac{1}{N}\sum_k G_0(k)^2 = \frac{1}{N}\sum_k \left(\frac{1}{E - \cos k}\right)^2 \\ &= -E(1-E^2)^{-\frac{3}{2}}i\end{aligned}$$

$$\varphi_1 = \frac{1}{N}\sum_k G_0(k)^2 g_k = \frac{1}{N}\sum_k G_0(k)^2 g_k^*$$
$$= -\frac{1}{2}(1-E^2)^{-\frac{3}{2}} i$$

结果求得单电子态密度

$$\rho(E) = \frac{1}{\pi} I_m \sum_k \langle\langle \hat{a}_k^+ | \hat{a}_k \rangle\rangle_{E-i0^+}$$
$$= \begin{cases} \dfrac{N}{\pi\sqrt{1-E^2}} + \dfrac{1}{\pi\sqrt{1-E^2}} & (0 \leqslant E^2 < 1) \\ 0 & (E^2 > 1) \end{cases} \tag{5}$$

因此 $N/2$ 长的"半无限"长链的单电子能态密度为:

$$\rho(E) = \frac{\frac{N}{2}}{\pi\sqrt{1-E^2}} + \frac{1}{2\pi\sqrt{1-E^2}} \tag{6}$$

式中右边第一项正好是 $N/2$ 长"无限长"链的单电子能态密度，所以一个理想的自由表面引起的单电子态密度增加为:

$$\Delta\rho_s(E) = \rho(E) - \rho_0(E) = \frac{1}{2\pi\sqrt{1-E^2}}$$

$\Delta\rho_s(E)/\rho(E) \sim \frac{1}{N}$，即理想表面使原来能带的单电子态密度均匀地增加，而增加是 $1/N$ 量级，当 $N$ 很大时，这种增加是微乎其微的.

## 三、"半无限"长链的非理想中断

在实际的细微晶粒材料中，有时小晶粒之间还存在一层薄薄的夹层，象 $V_3Si$ 之间夹有一层几十 Å 的 Cu 层[5]，因此通过夹层使小颗粒表面之间存在间接的耦合，因此表面不是完全自由的，我们近似地用一个单参量 $\eta$ 来表征链的中断程度，$\eta = 1$ 即对应理想中断，$\eta = 0$ 表示完全没有中断，一般 $0 < \eta < 1$ 表示非理想中断. 当然用 $\eta$ 来表征 $V_3Si$ 颗粒表面耦合的情况，只是一种粗略的近似，但还是反映一定物理意义的近似. 这时

$$\hat{V}_I = -\eta\sum_{k_1k_2} g_{k_2}^* \hat{a}_{k_1}^+ \hat{a}_{k_2} - \eta\sum_{k_1k_2} g_{k_1} \hat{a}_{k_1}^+ \hat{a}_{k_2} \quad (0 \leqslant \eta < 1) \tag{7}$$

如同上节，同样可求解单粒子格林函数，从而求得单电子态密度

$$\rho(E) = \begin{cases} \dfrac{N}{\pi\sqrt{1-E^2}} + \dfrac{1}{\pi\sqrt{1-E^2}} \\ \quad \times \dfrac{2(2-\eta)\eta[1+(2-\eta)^2]}{[1+(2-\eta)^2]^2 + E^2\{4\eta^2(2-\eta)^2 - [(2-\eta)^2+1]^2\}} & (E^2 < 1) \\ 0 \quad (E^2 > 1) \end{cases} \tag{8}$$

上式当 $\eta = 1$ 时退化为(5)式，当 $\eta = 0$ 时退化为 $\rho_0(E) = \frac{N}{\pi\sqrt{1-E^2}}$. 图 1 中画出

此为试读，需要完整PDF请访问：www.ertongbook.com

$\eta = 0.2$、0.5、0.8 及 $\eta = 1$ 时的 $N\dfrac{\rho(E)-\rho_0(E)}{\rho_0(E)} \sim E$ 的曲线，并且只画出 $E \in [0, 1]$ 的一半能带，而 $E \in [-1, 0]$ 的那一半与 $[0, 1]$ 对称.

从图中看出，当 $\eta$ 较小时，可使 $E^2 \sim 1$ 附近的态密度有较大的升高，如 $\eta=0.2$ 可使 $\rho(E)$ 在 $E^2 = 1$ 处增加 $\dfrac{61}{N}\rho_0(E)$ 左右. 当 $N$ 不太大时，在 $E^2 \lesssim 1$ 附近 $\rho(E)$ 比 $\rho_0(E)$ 的增加就不可忽略. 对于 $V_3Si$，按 Labbe-Friedel 模型，$E_F$ 是落在靠近 $E = -1$ 的峰处，因此要使小颗粒的 $V_3Si$ 的 $\rho(E_F)$ 有较大的提高，最好 $\eta$ 小一些，($\eta \to 0$ 时，也复下降). 这相当于说最好使颗粒之间有较强的耦合，这相当于要求颗粒之间的夹层不要过厚. 如果 A-15 化合物的 $E_F$ 是落在带心附近，(对低 $T_c$ 的 A-15 化合物，$E_F$ 向带心靠，即 $E_F$ 落在峰值外。) 那末正要求相反，希望尽可能理想中断，(当然实际情况不允许理想中断)，所以似乎不应在颗粒之间加夹层，单纯的颗粒化或许有利于这类材料的 $T_c$ 的提高.

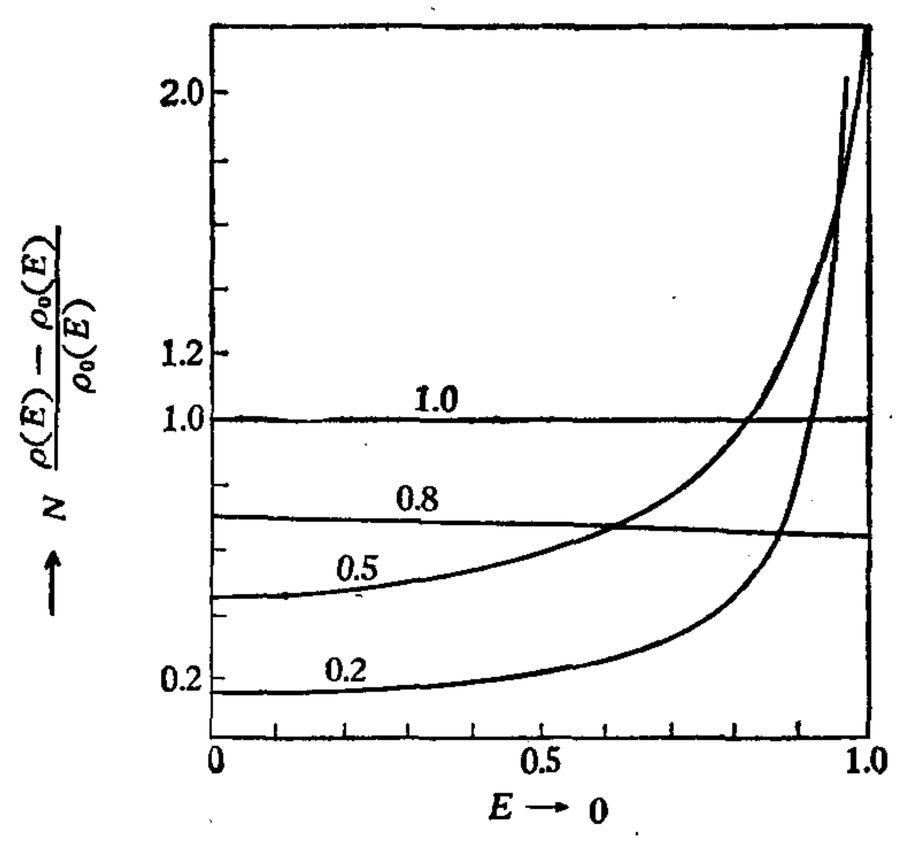



图 1

## 四、含杂表面

设在 (0, -1) 处链完全中断，0 处用杂质原子代替，这样可使 (0, 1) 之间电子的耦合有所改变，即偏离 1，我们用参量 $\epsilon$ 来表征这个偏离. 结果体系的附加表面势为

$$\begin{aligned}\hat{V}_I &= -\frac{1}{2}\psi_0^+\psi_{-1} - \frac{1}{2}\psi_{-1}^+\psi_0 - \frac{1}{2}\epsilon\psi_0^+\psi_1 - \frac{1}{2}\epsilon\psi_1^+\psi_0 \\ &\doteq -\sum_{k_1k_2} g_{k_2}^*\hat{a}_{k_1}^+\hat{a}_{k_2} - \sum_{k_1k_2} g_{k_1}\hat{a}_{k_1}^+a_{k_2} \\ &\quad -\epsilon\sum_{k_1k_2} g_{k_2}\hat{a}_{k_1}^+\hat{a}_{k_2} - \epsilon\sum_{k_1k_2} g_{k_1}^*\hat{a}_{k_1}^+a_{k_2}\end{aligned} \tag{9}$$

它仍可严格求得单粒子格林函数，从而正确求得这个体系的单电子态密度：

$$\rho_*(E) = \frac{1}{\pi} I_m \sum_k \langle\langle \hat{a}_k | \hat{a}_k^+ \rangle\rangle_{E-i0^+}$$

$$\begin{cases}\dfrac{N}{\pi\sqrt{1-E^2}} + \dfrac{1}{\pi\sqrt{1-E^2}} \times \dfrac{(1-\epsilon)^2(1+2\epsilon-\epsilon^2)}{(1-\epsilon)^4(1-E^2)+(1+2\epsilon-\epsilon^2)E^2} & E^2 < 1 \\ 0 & E^2 > 1\end{cases} \tag{10}$$

图 2 画出 $\epsilon = 0.2, 0.5, 0.8, 1.5$ 时

$$N\frac{\Delta\rho_{杂}(E)}{\rho_0(E)}=\frac{\rho(E)-\dfrac{N+1}{\pi\sqrt{1-E^2}}}{1/\pi\sqrt{1-E^2}}\sim E$$

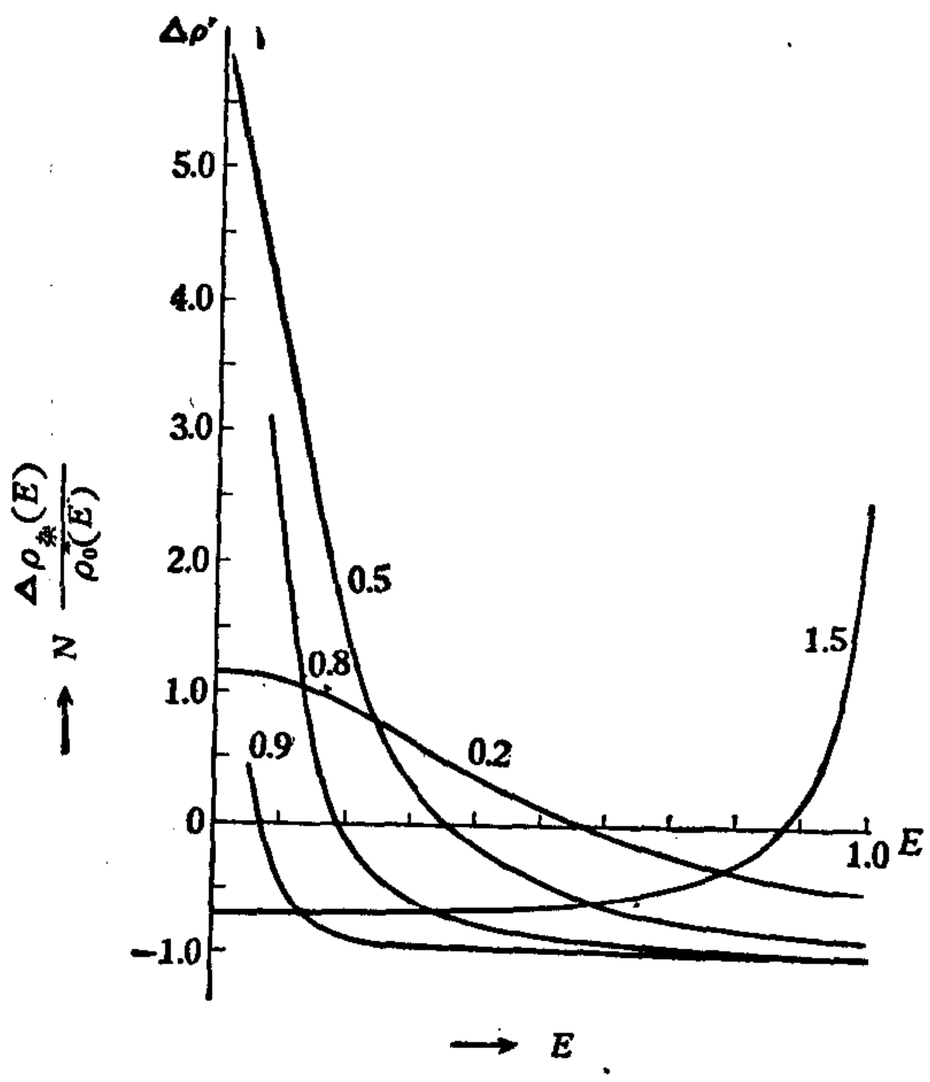



图 2

的曲线. 它表明由于含杂引起的单电子态密度改变.由图发现,当 $\epsilon$ 上升($\epsilon<1$),表明杂质差异大，使在 $E^2\sim1$ 附近的 $\rho(E)$ 下降,并低于理想表面情况下的态密度.而 $E^2\sim0$ 附近，出现相反情况，杂化可促使 $\rho(E)$ 有较大的提高.如果能设法造成 $V_3Si$ 表面 $\epsilon>1$ 的杂化，那末才有可能提高 $E^2\sim1$ 附近的单电子态密度.一般 $\epsilon<1$，因此我们希望 $\epsilon\to0$，以达到尽可能少的降低 $E^2\sim1$ 处的 $\rho(E)$，所以尽可能保持 $V_3Si$ 颗粒表面没有链的杂化. 由于链电子是 $d$ 电子，所以希望表面不要有过渡元素的杂质. 如果挑选以 S 电子为特征的金属(象 Cu 等),由于 S 电子和 $d$ 电子对称性的不同，可望有较小的耦合. 因此从表面杂化使 $E^2\sim1$ 处 $\rho(E)$ 下降角度来看，颗粒间挑选 Cu 作为夹层也是有利的.

## 五、讨 论

本文只是从 $\rho(E_F)$ 的角度来分析在适当的物理条件下有可能造成有利于提高 $T_c$ 的因素,当然 $T_c$ 的是否能提高较多还必须仔细研究,其中还必须包括表面对声子态、电声子耦合以及结构相变的影响. 从一维链模型，$\rho(E_F)$ 有可能因表面而提高,当然我们希望从原来已经是高 $T_c$ 的材料出发,再通过颗粒化来进一步提高 $T_c$，所以我们不能使颗粒充分微小，以致使其完全失去原来有利于高 $T_c$ 的块状特征. 究竟颗粒要多大，才能基本保持 $\rho(E)$ 与大块时的 $\rho(E)$ 一样(用周期性边界条件)? 从 X-$\alpha$ 方法计算一个原子集团[6](几十个 Al 原子)的能级密度分布例子,发现,折合到单位原子所占的能态度已与由能带论计算的结果以相当大的精度一样，这个精度约为 $\frac{E_g}{N}$($E_g$——能带宽，$N$——原子集团中原子数)量级.对于超导情况，我们要希望保持在 $\Delta E<1$ meV 量级内的态密度基本重合,因此精度至少要求 $\frac{E_g}{N}<1$ meV，$E_g$ 对 $V_3Si$ 约 1 eV 量级,结果 $N>10^3$ 量级,也就是说 $V_3Si$ 的原胞数(每个原胞对一个方向的链只提供 $\frac{1}{2}(2)=1$ 个 V 原子)至少应 $10^3$ 左右，线度约 50 Å. 颗粒再小，虽然表面成分愈来愈大，但已使它会失去有利的大块特征. 不过这时线度 ~50 Å，表面已占相当大成分.

上述分析严格说来只适用于大块的表面，而对小颗粒的表面影响是引伸出来作一些推测性的，因此是比较粗糙的．为要比较好地研究表面对小颗粒一维电子谱的影响，需要进行较复杂的数值计算．

## 附　　录

由于 $\Gamma_0$ 与 $\Gamma_1$ 是同一类型的，我们在这里只写出 $\Gamma_0$ 的计算．同理对 $\varphi_0$ 和 $\varphi_1$ 我们只写出 $\varphi_0$ 的计算．

$$\frac{1}{N}\Gamma_0 = \frac{1}{N}\sum_k \frac{1}{E-\cos k}$$

$$\doteq \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi} \frac{dk}{E-\cos k} \qquad (附\ 1)$$

令

$$\cos k = \frac{1}{2}(e^{ik}+e^{-ik}), \quad x = e^{ik} \qquad (附\ 2)$$

代入(附 1)，得一复平面内绕以原点为圆心的单位圆积分：

$$\frac{1}{N}\Gamma_0 = \frac{1}{2\pi i}\oint \frac{2dx}{2Ex-(x^2+1)} \qquad (附\ 3)$$

被积函数极点发生在

$$x_\pm = E \pm \sqrt{1-E^2}\,i \qquad (附\ 4)$$

当 $E \to E - i0^+$，及 $E^2 < 1$ 时，只有 $x_+$ 落在单位圆内：

$$|x_\pm|^2 = |E - i0^+ \pm i\sqrt{1-(E-i0^+)^2}\,|^2$$

$$= 1 \mp \frac{2}{\sqrt{1-E^2}}0^+ \quad (E^2<1)$$

故用留数定理，(附 3) 可求得：

$$\Gamma_0 = \frac{N}{E-x_+} = \frac{Ni}{\sqrt{1-E^2}} \quad (E^2<1) \qquad (附\ 5)$$

可证 $E^2 > 1$，亦可写成(附 5)，只是现在 $\Gamma_0$ 为实数．

同理可求

$$\varphi_0 = \frac{1}{N}\sum_k G_0^2(k) = \frac{1}{N}\sum_k \frac{1}{(E-\cos k)^2}$$

$$\doteq \frac{2}{\pi i}\oint \frac{xdx}{[2Ex-(x^2+1)]^2} \qquad (附\ 6)$$

若令 $f(x) = x$，$g(x) = [2Ex-(1+x^2)]^2$，由于 $g(x)$ 在 $x_0 = x_\pm$ 处存在二级零点，$E^2 < 1$ 时，单位圆内是 $x_0 = x_+$．故

$$\oint \frac{f(x)}{g(x)}dx \to \oint \frac{f(x_0)+f'(x_0)(x-x_0)+\cdots}{\frac{1}{2}g''(x_0)(x-x_0)^2+\frac{1}{6}g'''(x_0)(x-x_0)^3+\cdots}dx$$

$$= \oint \frac{[f(x_0) + f'(x_0)(x - x_0) + \cdots]\left[1 - \frac{1}{3}\frac{g'''(x_0)}{g''(x_0)}(x - x_0)\cdots\cdots\right]}{\frac{1}{2}g''(x_0)(x - x_0)^2} dx$$

$$= 2\pi i\left[\frac{f'(x_0)}{\frac{1}{2}g''(x_0)} - \frac{2}{3}\frac{g'''(x_0)}{(g''(x_0))^2}\right]$$

结果计算得

$$\varphi_0 = -E(1 - E^2)^{-\frac{3}{2}} i$$

## 参 考 文 献

[1] J. Labbe and J. Friedel, *J. Phys. Radium*, 27 (1966), 153, 303.
[2] Л. П. Горков, *ЖЭТФ*, **65** (1973), 1658.
[3] M. Weger and I. B. Goldberg, *Solid State Phys.*, 28 (1973), 1.
[4] L. F. Mattheiss, *Phys. Rev.*, B12 (1975), 2161.
[5] Winter, Heinrich; Sethna, Darius 西德专刊 Ger, offen., 25, 167, 47, (1976).
[6] Salahub, *Phys. Rev.*, B16 (1977), 2526.

此为试读，需要完整PDF请访问：www.ertongbook.com
China

第 1 卷 第 1 期
1979 年 3 月

低 温 物 理
DIWEN WULI

Vol. 1 No. 1
March, 1979

# 薄膜隧道结的漏洞分析和金相筛选法*

孟小凡 郭维新 崔广霁
(北京大学物理系)

**提 要**

本文用典型隧道结与超导微桥叠加的模型讨论了漏洞对薄膜隧道结 $I$-$V$ 曲线的影响，分析了漏洞产生的原因及其防止措施，提出了可以显著提高低温实验时隧道结成品率的简便方法——金相筛选法.

## 一、引 言

在 Josephson 器件中，薄膜隧道结占有重要的地位. 在薄膜隧道结中，最常用的是 Pb 和 Pb 基合金制作的结. 但是，Pb-PbOx-Pb 隧道结的制作难度较大，因为两层 Pb 膜之间的 PbOx 绝缘层要做得非常薄，只有 10—30 Å 厚(仅相当于几层原子的厚度)，同时又要非常均匀. 如果绝缘层不均匀，就很容易出现漏洞，影响结的质量，甚至使结变坏. 因此，弄清氧化层中漏洞产生的原因并尽可能地加以避免，是制作高质量的薄膜隧道结的关键之一. 我们在这里对薄膜隧道结氧化层中漏洞的成因、漏洞对结的直流 $I$-$V$ 特性曲线的影响以及如何防止漏洞等问题作了进一步的分析，并且提出一种在室温下利用金相筛选来淘汰具有漏洞的结，提高低温实验时结的成品率的方法.

## 二、理 论 分 析

Josephson 隧道结(图 1(a)) 可以近似地表示为电子对隧道通道 $J_1$. 结电阻 $R_1$ 和结电容 $C_1$ 相并联所组成的等效电路[1](图 1(b)). 我们讨论在没有外磁场作用时结上的直流电流、电压关系，对于直流电压 $C\dfrac{dV}{dt}=0$，所以

$$I_1=\frac{V_1}{R_1}+I_{J1} \tag{1}$$

$$I_{J1}=I_{C1}\sin\phi_0 \tag{2}$$

$\phi_0$ 是绝缘层两边超导体电子对波函数的量子位相差. 隧道结典型的直流 $I$-$V$ 曲线如图 1(c) 所示，在 $V_1=0$ 时结上有一个超导隧道电流 $I_{J1}$，其临界值是 $I_{C1}$. 当 $I_{J1}$ 达到 $I_{C1}$ 时，正常电子参与导电，结上开始出现电压. 由于我们使用恒流源测量，所以 $I$-$V$ 曲线在 $I=I_{C1}$ 处沿水平方向跳跃到单粒子隧道曲线上，$V_1=2\Delta/e$.

* 1978 年 8 月 27 日收到.

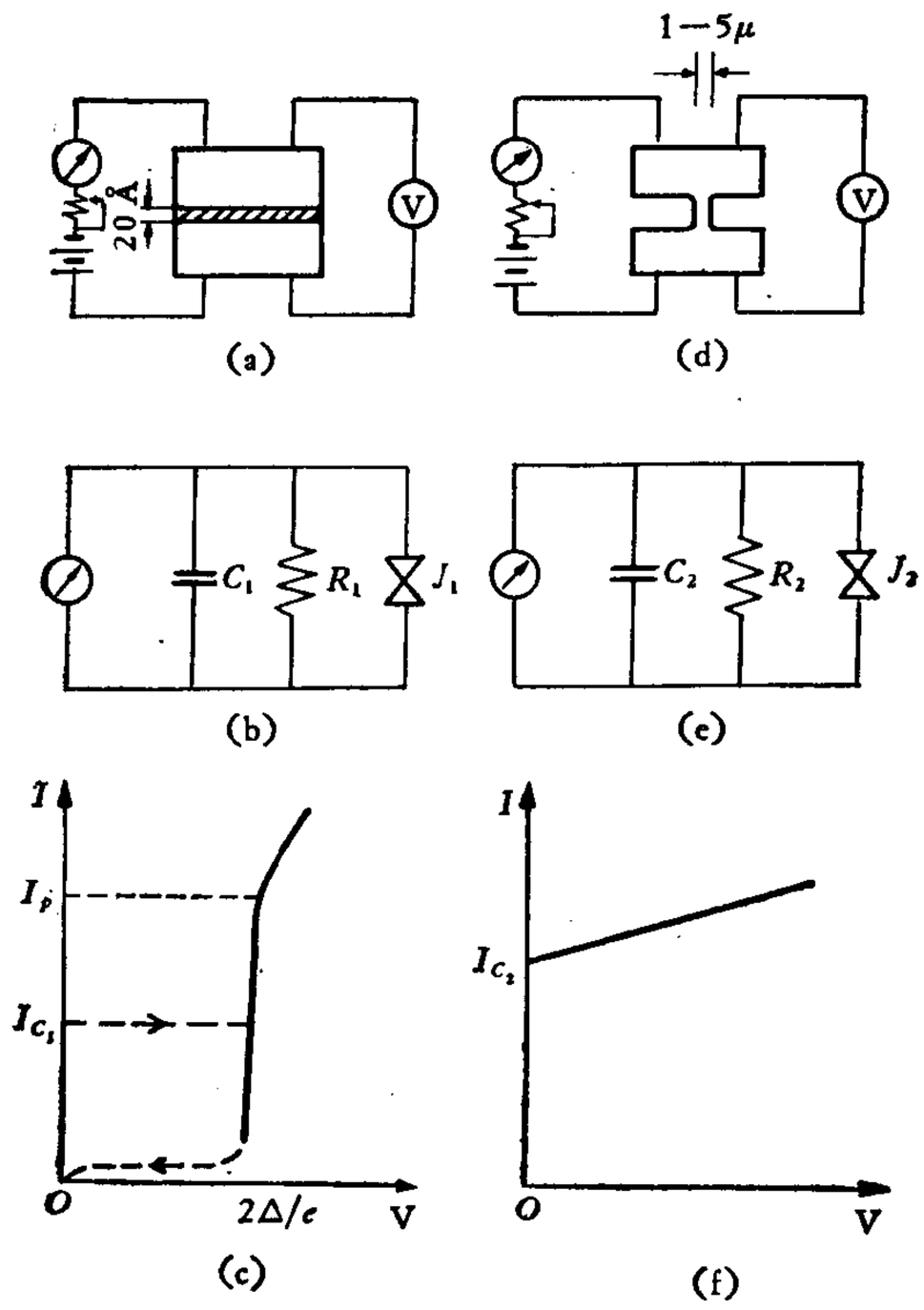



图 1 Josephson 隧道结和超导微桥的等效电路和直流 $I$-$V$ 曲线 (a) 隧道结示意图; (b) 隧道结等效电路; (c) 隧道结 $I$-$V$ 曲线; (d) 超导微桥示意图; (e) 超导微桥等效电路; (f) 超导微桥 $I$-$V$ 曲线

当隧道结中存在小的超导短路所形成的漏洞时，我们可以近似地把超导短路看作超导微桥(图 1(d)). 超导微桥同样也可以近似地表示为超导电流通道 $J_2$、微桥电阻 $R_2$ 和微桥电容 $C_2$ 相并联的等效电路[2](图 1(e)),它的直流电流、电压关系为:

$$I_2 = \frac{V_2}{R_2} + I_{J2} \tag{3}$$

$$I_{J2} = I_{C2} f(\phi_0) \qquad |f(\phi_0)| \leqslant 1 \tag{4}$$

$\phi_0$ 是微桥两边超导体的量子位相差, $f(\phi_0)$ 的具体形式和微桥的结构有关[2]. 微桥的直流 $I$-$V$ 曲线有不同的形式,它的理论也不够成熟. 我们现在只讨论一种比较简单的情形: 当 $V_2 = 0$ 时, 微桥中有一个超导电流 $I_{J2}$, 临界值为 $I_{C2}$; 当 $V_2 > 0$ 时, $I$-$V$ 曲线平缓地上升,在 $V_2$ 不太大时,可以近似地看作直线,如图 1(f).

有小漏洞的隧道结(图 2(a)), 由于漏洞的尺寸比结的尺寸小得多, 我们可以近似地把它看作一个无漏洞的典型隧道结和一个超导微桥相并联(图 2(b)), 它的等效电路如图 2 (c) 所示,它的电流,电压关系可表示为:

$$I = \frac{V}{R_1} + \frac{V}{R_2} + I_{J1} + I_{J2} \tag{5}$$

我们根据 (5) 式来分析漏洞对隧道结 $I$-$V$ 曲线的影响,考虑几种不同的情况:

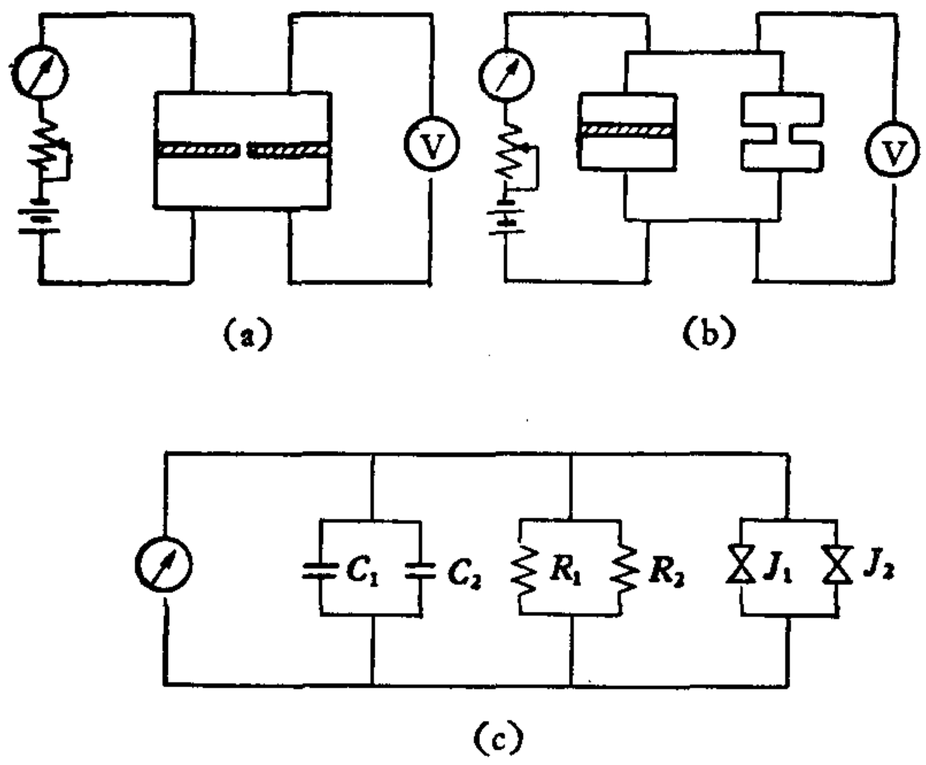



图 2　有漏洞的隧道结（a）及其近似模型（b）
等效电路（c）

1. 漏洞较小时，由于隧道结和微桥都是非线性元件，所以我们还需要具体分析不同电压区域的情况.

（1）当 $V=0$ 时，只存在超导电流，于是（5）式变为：

$$I = I_{J1} + I_{J2} \tag{6}$$

所以总的临界电流为：

$$I_C = I_{C1} + I_{C2} \tag{7}$$

（2）当 $0 < V < 2\Delta/e$ 时，隧道结的 $I_{J1}=0$，$R_1$ 相当大，$\frac{V}{R_1} \approx 0$；对于图 1(f) 形式的微桥，我们假定 $R_2$ 为常数，则 $I_{J2}$ 在数值上等于 $I_{C2}$，（5）式变为：

$$I \approx \frac{V}{R_2} + I_{C2} \tag{8}$$

由于我们采用恒流源，结上开始出现电压时仍有 $I = I_{C1} + I_{C2}$，则（8）式可改写为：

$$V \approx (I - I_{C2})R_2 = I_{C1}R_2 \tag{9}$$

若 $I_{C1}R_2 > 2\Delta/e$，则电压由零跳跃至 $2\Delta/e$ 处(图 3(a))；若 $I_{C1}R_2 < 2\Delta/e$，则电压由零跳跃至 $I_{C1}R_2$ 处，然后 $I$-$V$ 曲线以 $\frac{1}{R_2}$ 的斜率上升(图 3(b)).

（3）当 $V \approx 2\Delta/e$ 时，隧道结中单粒子隧道电流急剧增加至 $I_{P1}$，微桥上的电流增加为 $I_{C2} + \frac{2\Delta}{eR_2}$，所以结上的总电流在 $2\Delta/e$ 附近上升为：

$$I = I_P = I_{P1} + I_{C2} + \frac{2\Delta}{eR_2} \tag{10}$$

（4）当 $V > 2\Delta/e$ 时，$I$-$V$ 曲线以 $\frac{1}{R} = \frac{R_1 + R_2}{R_1R_2}$ 的斜率上升：

$$I = I_P + \frac{1}{R}\left(V - \frac{2\Delta}{e}\right) \tag{11}$$

2. 当漏洞较大时，$R_2$ 变得很小（$R_2 \ll R_1$），这时 $\frac{V}{R_1} \ll \frac{V}{R_2}$，可以近似地略去（5）式中

1107816

的 $\frac{V}{R_1}$，得到：

$$I = \frac{V}{R_2} + I_{J1} + I_{J2} \tag{12}$$

当 $V=0$ 时，$I_{J1}=I_{C1}$，$I_{J2}=I_{C2}$，总临界电流为：

$$I_C = I_{C1} + I_{C2} \tag{13}$$

当 $V>0$ 时，$I_{J1}=0$，总电流为：

$$I = \frac{V}{R_2} + I_{J2} \tag{14}$$

这时 $I$-$V$ 曲线变成超导微桥的曲线.

3. 当漏洞进一步增大时，绝缘层两边的超导体变成强耦合，两边的超导电子对具有相同的波函数，量子位相差 $\phi=0$，不存在 Josephson 效应，变成超导通路.

由以上分析我们可以得到：

(1) 隧道结中存在很小漏洞，并且满足 $I_{C1}R_2>2\Delta/e$ 时，$I$-$V$ 曲线仍是典型隧道结的曲线，只是 $I_C$、$I_P$ 增加，动态电阻 $R=\frac{R_1R_2}{R_1+R_2}$ 减小（图 3(a)）.

(2) 隧道结中存在较小漏洞，并且满足 $I_{C1}R_2<2\Delta/e$ 时，$I$-$V$ 曲线变成非典型隧道结的曲线(图 3(b)).

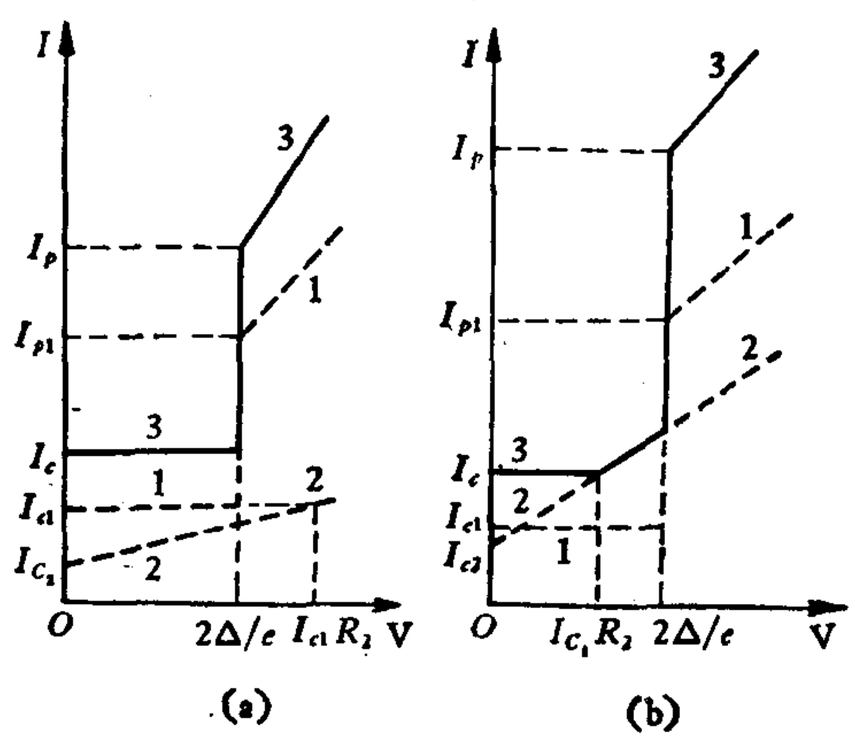



图 3 具有较小漏洞的隧道结的 $I$-$V$ 曲线 (a) $I_{C1}R_2>2\Delta/e$，(b) $I_{C1}R_2<2\Delta/e$. 图中 1. 2（粗虚线）分别表示典型结和微桥的 $I$-$V$ 曲线，3（粗实线）表示有漏洞的结的 $I$-$V$ 曲线

(3) 隧道结中存在较大漏洞时，$I$-$V$ 曲线变成超导微桥的曲线.

(4) 当漏洞进一步增大时，变成超导通路.

对于一般形式的超导微桥 $I$-$V$ 曲线，以上分析在原则上仍然成立.

因此，我们可以根据直流 $I$-$V$ 曲线的形状初步分析隧道结有无漏洞、漏洞大小等. 进一步判断有无漏洞可以通过在结上加磁场调制临界电流，分析直流量子干涉效应的曲线形状来进行[3].

## 三、实验结果和漏洞分析

### 1. Pb-PbOx-Pb 隧道结的制作工艺

我们蒸发用的 Pb 纯度为 99.999%. 衬底是大连 2 号底板玻璃，1.5 mm 厚，25 × 25 $mm^2$ 大小. 衬底经过仔细清洗后装入真空镀膜机内，用掩模板蒸发第一层 Pb 膜，真空度在 $1 \times 10^{-5}$—$3 \times 10^{-6}$ 托之间，Pb 膜厚度约为 4000 Å，蒸发速度为 100 Å/秒左右.

Pb 膜蒸发之后立即在钟罩内进行氧化，我们采用以下几种氧化方法：

(1) 辉光放电氧化：Al 放电环上加 − 1800V 的高压，底盘接地，氧气压力为 $1 \times 10^{-1}$—$5 \times 10^{-2}$ 托之间. 在 Al 环和底盘之间形成直流辉光放电，电流密度约为 140 $\mu A/cm^2$. 衬底放在阴极暗区，离放电环的垂直距离为 30 mm. 氧化时间在 7—30 秒之间.

我们还采用了换模板前后辉光放电氧化两次的方法，氧化时间是 7 秒 +7 秒或 10 秒 +10 秒(其他条件不变).

(2) 热氧化：氧气压力在 20—730 托之间，一般为 380 托，温度为室温 (20—30℃)，氧化时间在 10 分钟到 12 小时之间.

(3) 辉光放电氧化加热氧化：辉光放电时间为 7 秒至 15 秒，热氧化时间为 10 分钟至 30 分钟，其他条件分别和前面辉光放电和热氧化工艺相同.

氧化后打开钟罩换模板，然后蒸发第二层 Pb 膜，蒸发速度为 30 Å/秒左右，厚度约为 2000 Å. 这样，在两层 Pb 膜重叠处形成 Pb-$PbO_x$-Pb 结，结面积为 0.3 × 0.9 $mm^2$.

结表面用光刻胶或聚乙烯醇缩醛胶 (JSF-4) 保护，测量引线用 $I_n$ 焊接. 结做完后在 4.2K 做低温实验，用 X-Y 记录仪测量直流 $I$-$V$ 特性曲线.

### 2. 漏洞分析

我们采用上面三种不同的氧化工艺都能得到典型的无明显漏洞的隧道结，结的临界电流在 $10^{-5}$—$10^{-1}$ A 之间，电阻在 $10^{-3}$—1 Ω 之间. 典型结的 $I$-$V$ 曲线如图 4(c)、(d) 和图 5(c)、(d). 但是也经常得到一些其他形式的 $I$-$V$ 曲线，如图 6(c)、(d) 和图 7(c)、(d)，由前面的分析可知，这些都是由于隧道结的绝缘层中存在不同大小的漏洞所造成的.

隧道结中漏洞产生的原因是十分复杂的，要得到高质量的隧道结必须尽可能地减少漏洞，下面根据我们的经验分析一下漏洞产生的各种原因以及防止办法：

(1) 第一层 Pb 膜不纯或者 Pb 膜表面污染使氧化层不均匀，容易产生漏洞. 我们采取镀膜机长时间预抽高真空减少残余的有害气体、高纯 Pb 在蒸发前进行预熔等措施来防止.

(2) 氧气不纯使氧化层污染. 我们使氧气预先通过液氮冷阱加以纯化.

(3) 辉光放电氧化时由于模板边缘的掩蔽作用使得结的边缘氧化不足. 我们采取换模板前后两次辉光放电，或者辉光放电氧化加热氧化的方法来解决.

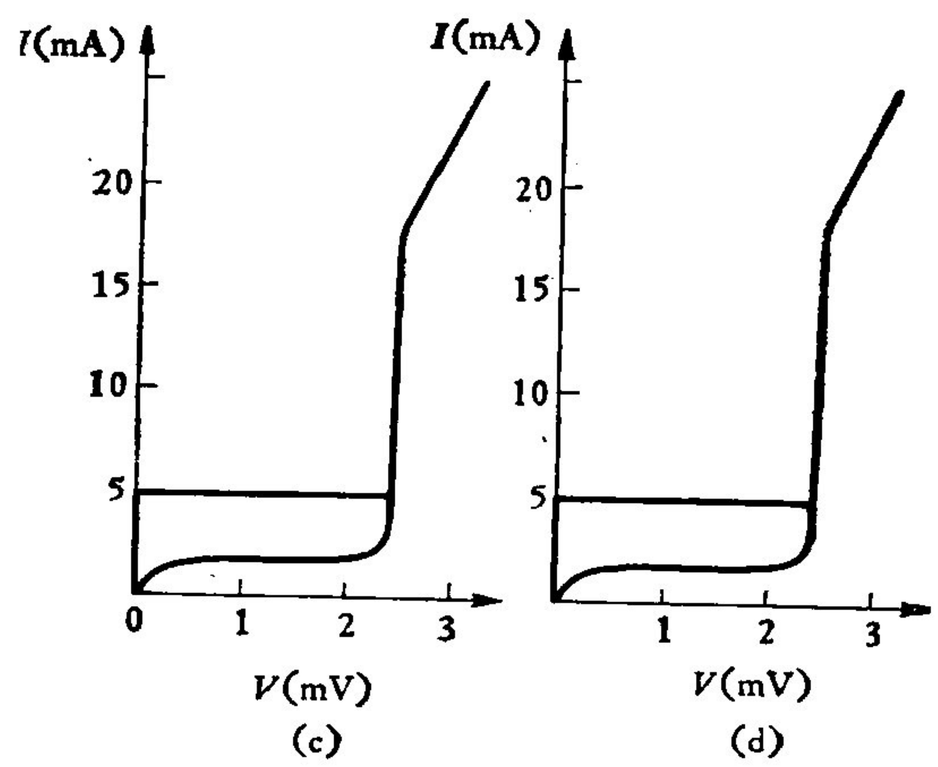
(4) 换模板时 Pb 膜表面氧化层划伤或污染. 我们在衬底和模板之间加一层 0.1 mm 左右的垫片来避免氧化层划伤，向钟罩内充的空气事先用分子筛干燥并过滤，在用液氮降湿的操作箱内换模板，尽量缩短时间.

(5) 蒸发第二层 Pb 膜时蒸发的 Pb 原子或 $M_0$ 舟热辐射损坏氧化层. 我们减小第二

层 Pb 膜的蒸发电流、蒸发速度并在 $M_0$ 舟和衬底之间加防热辐射罩(用不锈钢板做成，中心留一小孔，使得蒸发的 Pb 原子可以通过，但是 $M_0$ 舟辐射的大部分热量都被屏蔽).

(6) 衬底表面不清洁，杂质颗粒造成 Pb 膜上的针孔，使得氧化层出现漏洞. 尽管我们采取了仔细的清洗步骤，但是仍然难以避免，因为去离子水中总有少量残存杂质颗粒，同时衬底在烘干和装片过程中暴露在大气中，很容易受空气中尘粒的污染. 根据我们的经验，这是隧道结产生漏洞的主要原因之一. 下面我们着重分析一下衬底上尘粒的影响.

由于我们蒸发第一层 Pb 膜的厚度是 4000 Å 左右，所以衬底上直径小于 $0.4\mu$ (4000 Å)的尘粒很容易被 Pb 膜覆盖，对氧化层影响不大. 但是直径超过 $0.5\mu$ 的尘粒往往在 Pb 膜上形成针孔，使得氧化层不连续，在这些地方很容易产生漏洞. 我们用金相显微镜透过玻璃衬底观察结区第一层 Pb 膜与衬底的交界面，因为金相显微镜的分辨本领是 $0.2\mu$ 左右，所以能够观察到衬底上 $0.5\mu$ 以上的尘粒. 我们发现，典型结相应的 Pb 膜表面往往比较清洁，图 4(a)、(b) 是同一衬底上两个结结区 Pb 膜和衬底交界面的金相照片，它们都很清洁，用金相显微镜观察不到针孔. 图 4(c)、(d) 是它们相应的 $I$-$V$ 曲线，都是典型隧道结的曲线，临界电流大小相等. 直流量子干涉效应的曲线分析表明这种结没有明显的漏洞. 图 5(a)、(b) 也是同一衬底上两个结的金相照片，(a) 很清洁，(b) 有一个很小的针孔(如箭头所示)，它们相应的 $I$-$V$ 曲线分别为 (c) 和 (d)，形状都是典型结的曲线，但是 (d) 的临界电流较大，根据前面的分析，这是由于典型结中存在很小的漏洞引起的.




(a) 80×　　(b) 80×

图 4　典型结的金相照片 (a)、(b) 和 $I$-$V$ 曲线 (c)、(d)

图 6(a)、(b) 是两个结的金相照片，(a) 的针孔略大(如箭头所示)，它相应的 $I$-$V$ 曲线为 (c)，是非典型结的曲线，相当于前面分析过的有较小漏洞的情形. (b) 的针孔较大(如箭头所示)，它相应的 $I$-$V$ 曲线为 (d)，类似超导微桥的曲线，相当于前面分析过的漏洞较大时的情形.

图 7(a)、(b) 也是两个不同结的金相照片，(a) 的针孔更大(如箭头所示)，相应的 $I$-$V$