

Ginzberg-Landau 理论对超导薄膜的适用性

张 裕 恒

(中国科学技术大学物理系)

1980年10月10日收到

提 要

本文指出虽然三十年来 Ginzberg Landau 理论(以下简称 G-L 理论)被人们广泛地用于描述超导薄膜的临界场,而且它还是描述强耦合超导薄膜临界场的唯一理论,但 G-L 关于薄膜临界场的理论不仅一直未得到实验证明,而且它既不能用于描述结晶态的弱耦合超导薄膜的临界场,也不适用于描述强耦合超导薄膜的临界场。

本文还提出了一个在薄膜极限下定域的新判据: $\xi \ll \lambda$, $\xi \ll d$ 同时满足。由新判据就可以解释理论与理论、理论与实验之间的一致。

一、引 言

三十年来 G-L 理论^[1]广泛地被用于描述超导薄膜的临界场,而且它还是描述强耦合超导薄膜临界场的唯一理论。六十年代人们就它对结晶态的弱耦合超导薄膜的适用性进行了仔细的探讨^[2-10],认为它不能适用于描述结晶状态的弱耦合超导薄膜的临界磁场问题。

由于 G-L 理论是定域理论,那么对于非晶、液晶态(大都为强耦合)的超导薄膜,其电子平均自由程 l 很短(2—10 Å),因此相关长度 ξ 远小于磁场对膜的穿透深度 λ ,满足人们公认的定域判据 $\xi \ll \lambda$ 的条件,所以用它描述强耦合超导薄膜的临界场从未有人怀疑过。

虽然人们已确认 G-L 理论不能描述结晶态弱耦合超导薄膜的临界磁场问题,但理论上和实验上还存在一些矛盾未解决。在薄膜极限下, $\frac{1}{\xi} = \frac{1}{\xi_0} + \frac{1}{l}$, $\xi \approx d$; $\lambda \propto d^{-\frac{1}{2}}$, 那么在结晶态超导薄膜中只要膜厚度 d 足够地薄,则可得到 $\xi \ll \lambda$ ^[8]。这样,膜很薄时将满足定域判据条件, G-L 理论应该是适用的。但这个结论却与实验结果在定性上都不一致^[7,9]。

我们提出了一个在薄膜极限下定域的新判据: $\xi \ll \lambda$, $\xi \ll d$ 同时满足。由新判据就可以解释这些理论与理论、理论与实验之间的一致。

我们还发现 G-L 关于薄膜临界场的理论也不能描述强耦合超导薄膜,因此得出了 G-L 关于薄膜临界场的理论迄今并未得到实验证明的结论。

二、理论与实验的矛盾

1950 年 G-L^[1] 建立了超导非线性、定域的唯一象理论, 指出在薄膜极限下, 即膜厚度 $d < d_c = \sqrt{5} \lambda(T)$ 时, 薄膜的临界场 $H_c(T)$ 为

$$\frac{H_c(T)}{H_{cm}(T)} = 2 \sqrt{6} \frac{\lambda(T)}{d}, \quad (1)$$

式中 $H_{cm}(T)$ 是大块物质的临界场, $\lambda(T)$ 是穿透深度, 它是物质常数, 与 d 无关.

Abrikosov 和 Gor'kov 从微观 BCS 理论诱导出 G-L 方程, 确认 G-L 理论的正确性, 所以人们通常又称这个理论为 GLAG 理论. G-L 理论至今都被广泛地承认和应用.

G-L 理论是定域的, 定域的判据是什么呢? 人们公认: 如果超导物质的相关长度 $\xi \ll \lambda$ 场对超导体的穿透深度 λ 就是定域 (或叫 London) 极限; 如果 $\xi \gtrsim \lambda$ 就是非定域 (或叫 Pippard) 极限. 因为

$$\frac{1}{\xi} = \frac{1}{\xi_0} + \frac{1}{l}. \quad (2)$$

ξ_0 是纯超导物质的相关长度, l 是电子平均自由程. 如果膜很薄以致 $l \approx d$, 则可出现 $d = \xi \ll \lambda$ 的情况, 按定域判据, 薄膜属于 London 极限^[8], G-L 理论的定域条件在薄膜中满足, 因此 $H_c \propto d^{-1}$.

Заварицкий^[2], Гинзбург 和 Шалаников^[3], Горьков^[4], Хухарева^[5] 等分别从实验上测得了不同厚度 Sn, Tl, In 和 Hg 等膜的临界场 H_c , 得出一致于 G-L 理论的结论, 即 $H_c \propto d^{-1}$.

Ittner^[6], Toxen^[7], Douglass 等^[8]以及本文作者^[9]实验上分别测量了 Sn, In 和 In-Sn 合金膜的 H_c 与 d 的关系, 都得出 H_c 很好地正比于 $d^{-\frac{1}{2}}$. 吴杭生^[10]、Toxen^[7] 从非定域考虑, 理论上得出 $H_c \propto d^{-\frac{1}{2}}$, 特别是吴杭生理论很好地符合于我们的实验结果. 这些理论和实验上的结论说明薄膜属于 Pippard 极限, 但这个结论又与公认的定域判据条件相矛盾.

三、G-L 关于薄膜临界场的理论没有得到实验证明

1. 薄膜中定域条件的新判据

我们知道, 定域是指空间中某点 $\mathbf{R}$ 的电流密度 $\mathbf{J}(\mathbf{R})$, 只决定于这一点的矢势 $\mathbf{A}(\mathbf{R})$, 它们的关系由 London 方程给出

$$\mathbf{J}(\mathbf{R}) = - \frac{c\xi}{4\pi\xi_0\lambda_L^2} \mathbf{A}(\mathbf{R}), \quad (3)$$

式中 $\lambda_L^2 = \frac{mc^2}{4\pi n e^2}$ 是 London 穿透深度. 而非定域是 $\mathbf{J}(\mathbf{R})$ 决定于某一个相关区 (相关长度为 ξ) 中矢势 $\mathbf{A}(\mathbf{R})$ 的积分作用, 它们的关系由 Pippard 方程给出

$$\mathbf{J}(\mathbf{R}) = - \frac{3}{4\pi\xi_0} \frac{c}{4\pi\lambda_L^2} \int \frac{\mathbf{R} \cdot (\mathbf{R} \cdot \mathbf{A})}{R^4} e^{-\frac{R}{\xi}} d\tau. \quad (4)$$

在 $\lambda \gg \xi$ 的薄膜中, $\mathbf{A}$ 可以认为是不变的, 我们解出在薄膜中的 Pippard 方程 (4), 得

$$\lambda = \frac{4}{3} \frac{\xi_0 \lambda_L^2}{\xi} \frac{1}{\frac{2}{3}(1 - e^{-d/2\xi}) - \frac{1}{6} \left(\frac{d}{2\xi}\right) e^{-d/2\xi} \left(1 - \frac{d}{2\xi}\right) - \left[\frac{d}{2\xi} - \frac{1}{6} \left(\frac{d}{2\xi}\right)^3\right] Ei\left(-\frac{d}{2\xi}\right)}, \quad (5)$$

式中

$$-Ei(-u) = \int_1^{\infty} \frac{e^{-ux}}{x} dx.$$

在纯的结晶态超导体中 l 很大, ξ_0 是 2000 Å 量级, $l \gg \xi_0$ 是完全可以达到的。如果膜很薄, 则可令 $l = d$, 由 (2) 式和 (5) 式得

$$\lambda^2 = \frac{4}{3} \frac{\xi_0 \lambda_L^2}{d} \left[\frac{2}{3}(1 - e^{-\frac{1}{2}}) - \frac{1}{24} e^{-\frac{1}{2}} - \frac{23}{48} Ei\left(-\frac{1}{2}\right) \right]^{-1}. \quad (6)$$

显然, 在晶态薄膜中, λ 不是 G-L 理论给出的与 d 无关的结论, 而是 $\lambda \propto d^{-\frac{1}{2}}$ 。

如果除了 $\lambda \gg \xi$ 之外, 再加上一个 $d \gg \xi$ 的条件, 则 (5) 式变成

$$\lambda^2 = \lambda_L^2 \frac{\xi_0}{\xi}. \quad (7)$$

(7) 式的 λ 与 d 无关, 在此情况下 (4) 式过渡到 (3) 式。由此, 我们提出一个在薄膜极限下定域条件的新判据: $\lambda \gg \xi$ (或 l), $d \gg \xi$ (或 l) 要同时满足。

2. G-L 理论不能用于描述晶态薄膜的原因——薄膜是 Pippard 极限而不是 London 极限

由新判据条件, 上述矛盾就不存在了。因为 G-L 理论只能适用于 $\lambda \gg \xi, d \gg \xi$ 的膜, 对于晶态薄膜, $l = d$, 则 $\xi = d$, 不满足定域条件; 如果膜很厚以致 l 不受 d 的限制, 而是超导物质内禀量, 则 $l \gg \xi_0$, 由 (2) 式得 $\xi = \xi_0 \sim 2000 \text{ Å}$, 所以 $d \gg 2000 \text{ Å}$ 。那么 G-L 理论适用的这些晶态膜已不是薄膜而是厚膜了。因此对薄膜 G-L 理论不符合 $H_c \propto d^{-\frac{1}{2}}$ 的实验结果是不足为奇的。由于晶态薄膜不满足定域条件, 当然定域的 G-L 理论不能描述它。

正是由于在结晶态薄膜极限下, 不能同时满足 $\lambda \gg \xi, d \gg \xi$ 的新判据, 所以薄膜不是 London 极限而是 Pippard 极限。

3. 所谓实验符合 $H_c \propto d^{-1}$ 的错误所在

既然晶态薄膜不是 London 极限而是 Pippard 极限, 那么为什么 Заварицкий 等在结晶态薄膜上却得出实验上一致于 London 极限的 G-L 理论的结果呢? 我们仔细地分析了 Заварицкий 等的实验结果, 发现他们的实验结果不仅比我们^[9]和 Toxen^[7]等的实验点分散得多(见图 1 和图 2), 而且分散并非偶然的实验误差, 它是有一定规律性的。对于薄膜, 实验点系统地高于 G-L 理论曲线, 随着膜厚度的增加, 实验点逐渐系统地降低; 对于较厚的膜, 实验点系统地低于理论值。我们还发现他们不是取 $H_c(T)-d$ 的关系, 而是作 $\frac{H_c(T)}{H_{cm}(T)} - \frac{\lambda(T)}{d}$ 的图, 又人为地规定 $\lambda(T)$ 与 d 无关。然而我们知道, 只有当 d 大时 λ 才近似地与 d 无关; 对于薄膜 $\lambda \propto d^{-\frac{1}{2}}$ ^[6,7,9,10]。因而在薄膜极限下, Заварицкий 等人描

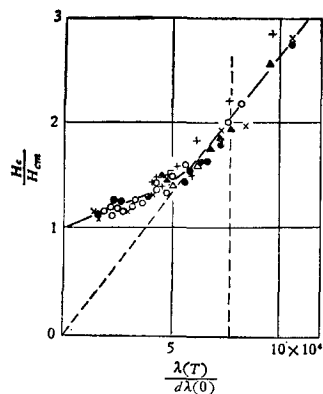


图1 Заварицкий 对于 In 的实验结果与理论比较
实线是 G-L 理论曲线; d_c 是临界厚度 $d_c = \sqrt{5} \lambda(T)$;
+ — 2.7×10^{-3} cm; Δ — 2.9×10^{-3} cm;
○ — 5.7×10^{-3} cm; $\bullet$ — 5.8×10^{-3} cm;
 $\times$ — 8.5×10^{-3} cm

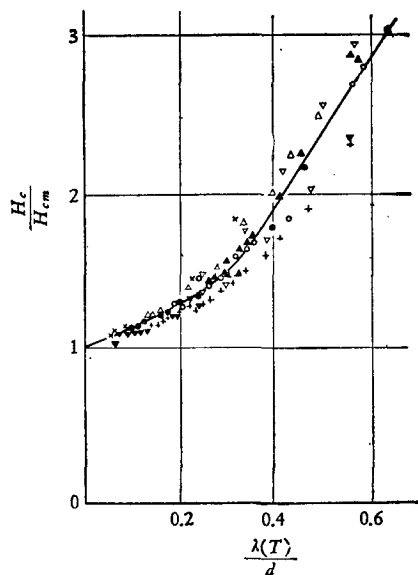


图2 Заварицкий 对于 Sn 的实验结果与理论比较
实线是 G-L 理论曲线;
 Δ — 2.77×10^{-3} cm; ∇ — 3.12×10^{-3} cm;
○ — 4.35×10^{-3} cm; Δ — 5.73×10^{-3} cm;
+ — 6.30×10^{-3} cm; $\bullet$ — 7.10×10^{-3} cm;
 ∇ — 1.30×10^{-4} cm; $\times$ — 1.48×10^{-4} cm

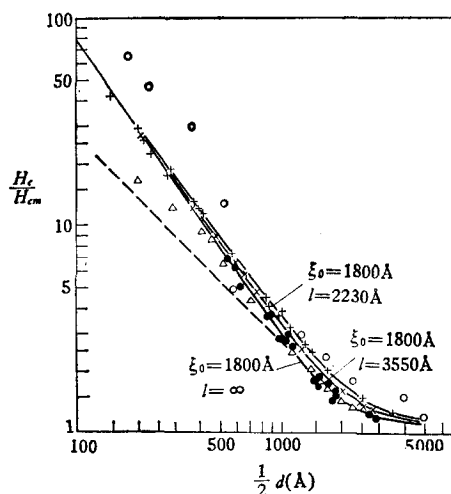


图3 弱耦合超导薄膜临界场随厚度的变化关系

——为吴杭生理论曲线 ($\xi_0 = 1800 \text{ \AA}$; $l = 2230 \text{ \AA}$, $3550 \text{ \AA}$, ∞);
——为 G-L 理论曲线, 其穿透深度 $\lambda(0) = 640 \text{ \AA}$;
 $\bullet$ 为纯 In (Тоцен); $\times$ 为 In + 2% Sn; $+$ 为 In + 3% Sn;
 $\circ$ 为 Tl } (Заварицкий); $T = 0.9T_c$
 Δ 为纯 Sn

述实验的横坐标 λ/d 取小了, 那么实验点当然要偏高, 因而实验点产生了必然的系统误差。由于 Заварицкий 等取用的最薄的膜是 $2700 \text{ \AA}$, 可以预期膜再薄时, 实验误差将更大。其实, Заварицкий 等的实验结果也不是 $H_c \propto d^{-1}$, 重新整理他们的结果, 绘在 H_c-d

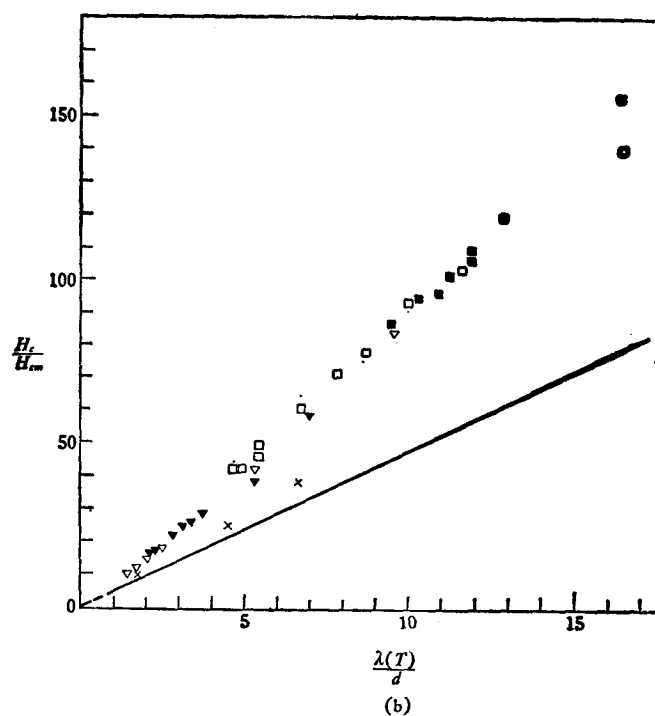
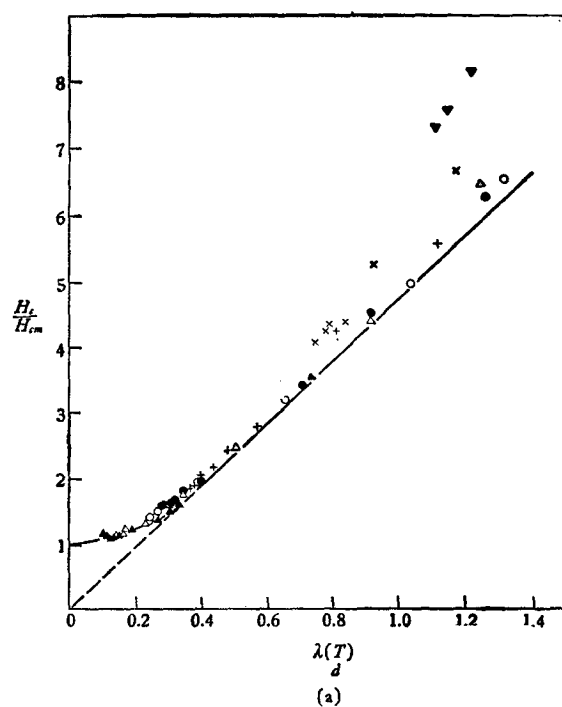


图 4 用 Заварицкий 等人的描述方法对 In + 3%Sn 的实验结果与理论比较

实线是 G-L 理论曲线, $\lambda(0) = 800 \text{ \AA}$

■—289 Å; □—395 Å; ▼—565 Å; ▽—836 Å; ×—1096 Å;
+—2180 Å; ●—2859 Å; ○—3341 Å; ▲—5010 Å; ▲—7130 Å

的对数坐标图中(见图 3),虽然实验点很分散,但实验点明显地趋向于 $H_c \propto d^{-\frac{1}{2}}$, 而不是 $H_c \propto d^{-1}$. 图 3 中同时给出了 Toxen^[7] 的纯 In (相当于 $l = \infty$) 及我们^[9] 的 In + 2% Sn (相当于 $l = 3550 \text{ \AA}$) 和 In + 3% Sn (相当于 $l = 2230 \text{ \AA}$) 不同厚度膜的 H_c 的实验结果,实验点与吴杭生^[10] 和 Toxen^[7] 的理论很好地一致, $H_c \propto d^{-\frac{1}{2}}$.

为了更进一步地说明Заварицкий等人描述方法的错误,我们用他们的描述法,取 $\lambda(T)$ 是 In + 3% Sn 的大块值,并规定它不随厚度而变,把我们的实验值与 G-L 理论比较(见图 4). 对 $300 \text{ \AA}$ 左右的膜,实验值与理论值竟达 90% 以上的误差. 而且很明显地看到随膜厚度 d 的增加,误差系统的降低.

4. 强耦合超导薄膜和赝晶薄膜的临界场

由于晶态薄膜不能满足 London 极限的条件,所以在晶态薄膜上其临界场不能证明 G-L 理论的正确性. 人们立刻就会想到在非晶态和赝晶态薄膜中由于 l 很短 ($2-10 \text{ \AA}$), $\lambda \gg \xi$, $d \gg \xi$ 是同时满足的,在这些膜上一定可以证明 G-L 理论的正确性. 我们又知道非晶态大都是强耦合超导体,那么迄今人们利用推广的 G-L 理论^[11] 描述强耦合超导薄膜似乎是正确的. 如果令

$$H_c(T) = Ad^n, \quad (8)$$

A 是不依赖于 d 的物质常数,对于 G-L 理论, $A = 2\sqrt{6} \lambda(T) H_{cm}(T)$. 对 (8) 式取对数

$$\ln H_c(T) = \ln A + n \ln d, \quad (9)$$

作 $\ln H_c - \ln d$ 曲线,则得到一条斜率是 n 、截距是 $\ln A$ 的直线. 如 $n = -1$,则是定域的 G-L 理论的结果;如 $n = -3/2$,则是非定域的结果.

Reale^[12] 测量了淀积在低温 (4.2K) 微晶 Cu 衬底上的不同厚度的 Si 和 Ge 赝晶薄膜和直接蒸发淬火到底板上并使之有常态 Al 型结构的不同厚度的 Pb 膜的 H_{c2} . 我们把 Reale 的实验结果作出 $\ln H_{c2}$ 和 $\ln d$ 的关系,见图 5. 发现实验结果既不给出 $n = -1$ 也不给出 $n = -3/2$,而是实验值远低于 G-L 理论,这说明强耦合超导薄膜和赝晶超导薄膜的临界场 H_{c2} 既不适用于定域也不适用于非定域理论^[13].

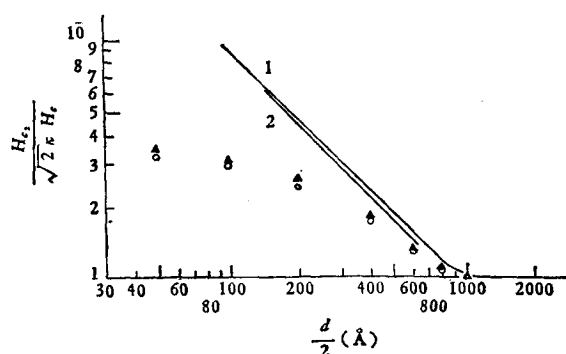


图 5 强耦合和赝晶超导薄膜的临界场与厚度关系

曲线 1 为 Abrikosov 理论曲线; 曲线 2 为 $\frac{H_c}{H_{cm}} = 2\sqrt{6} \frac{\lambda}{d}$;

▲ 为 Si/Cu 赝晶; ○ 为 Pb(Al 型)

5. 关于 Hg 膜的临界场 H_c

人们公认 Hg 和 Pb 是典型的强耦合超导体, 既然 Pb 膜的 H_c 不能用 G-L 理论描述, 很自然人们就想到 Hg 的 H_c - d 的关系. 早在 1939 年 Appleyard 等^[14]就测量了不同厚度 d 的 Hg 膜的 H_c . 这个结果又惊人地与 Pb 不一致, Hg 的 H_c - d 关系是 $H_c \propto d^{-\frac{1}{2}}$, 而不是低于 $H_c \propto d^{-1}$. 那么, 从临界场的性质看, 显然 Hg 和 Pb 不是属于同一种类型超导体, 但这个结论又与一般的概念矛盾. 最近吴杭生等^[15]指出 Hg 属于 A 型超导体, 而 Pb 是典型的 B 型超导体; 我们^[16]在研究 A 型和 B 型超导体的临界场时也得出 Hg 是属于 A 型, 而 Pb 是 B 型, 所以 Hg 与 Pb 的 H_c - d 关系完全不一致也就不足为奇了.

四、结 论

三十年来 G-L 理论广泛地被用于描述超导体的临界场, 特别是它还是迄今描述非晶超导体临界场唯一的理论. 我们发现 G-L 关于薄膜临界场的理论的正确性却一直没有得到实验证明. 对于结晶态超导薄膜, 理论和实验已肯定它不适用; 对于非晶态超导薄膜, 它定性上都不符合实验结果.

由过去的定域判据, 因为在薄膜中 $\xi \ll \lambda$, 所以薄膜应是定域极限, G-L 理论适用. 但它又与实验结果在定性上不一致. 由我们提出的在薄膜中定域条件的新判据: $\xi \ll \lambda$, $\xi \ll d$ 同时满足, 就可以解释上述所有矛盾.

参 考 文 献

- [1] В. Л. Гинзбург, Л. Д. Ландау, *ЖЭТФ*, **20** (1950), 1064.
- [2] Н. В. Заварицкий, *ДАН СССР*, **75** (1951), 665; **85** (1952), 749.
- [3] Н. И. Гинзбург, А. И. Шальников, *ЖЭТФ*, **37** (1959), 399.
- [4] В. Л. Горьков, *ЖЭТФ*, **36** (1959), 1918.
- [5] И. С. Хухарева, *ЖЭТФ*, **41** (1961), 728.
- [6] B. Irtner, *Phys. Rev.*, **119**(1960), 1591.
- [7] A. M. Toxen, *Phys. Rev.*, **123**(1961), 442; **127**(1962), 382; **130**(1963), 1808.
- [8] D. H. Douglass, R. H. Bloomberg, *Phys. Rev.*, **127**(1962), 2038.
- [9] 张裕恒, 物理学报, **22**(1966), 341.
- [10] 吴杭生, 物理学报, **21**(1965), 132.
- [11] D. Rainer, *Phys. Rev.*, **88**(1973), 5324.
- [12] C. Reale, *Phys. Lett.*, **64A**(1978), 475.
- [13] 张裕恒, 物理学报, **28**(1979), 883.
- [14] E. T. S. Appleyard, J. R. Bristow, H. London and A. D. Misener, *Proc. Roy Soc. London*, **A127** (1939), 540.
- [15] 周子舫、吴杭生、茅德祥、顾一鸣, 物理学报, **29**(1980), 1186.
- [16] 张裕恒、曹效文, 物理学报, **29**(1980), 127.

THE ADAPTABILITY OF GINZBERG-LANDAU THEORY FOR SUPERCONDUCTING THIN FILMS

ZHANG YU-HENG

(Department of Physics, University of Science and Technology of China)

ABSTRACT

It is pointed out in this paper that so far G-L theory for the critical magnetic field of superconducting thin films has not been verified by experiments although G-L theory has been extensively used to describe the critical magnetic field of superconducting thin films in the past three decades and it is the only theory to describe the critical magnetic field of strong-coupling superconducting thin films. We find that the critical magnetic field of weak-coupling superconducting crystalline thin films can't be described by G-L theory and that the critical magnetic field of strong-coupling superconducting thin films can't be adapted also.

In this paper, we present a new local criterion, i.e. $\xi \ll \lambda$, $\xi \ll d$ would be satisfied simultaneously in the thin film limit. By means of this new local Criterion, we can explain disagreement between theories and theory and experiments.