超薄非晶 MoSi 薄膜的厚度依赖形貌与电输运

O.O. Leha[1], O. V. Zraichenko[1], S. I. Kryvonohov[2], V.Yu. Lyakhno[1]/乌克兰国家科学院 *B. Verkin* 低温物理与工程研究所，乌克兰哈尔科夫 *Nauky* 大道 *47* 号，邮编 *61103*[2]乌克兰国家科学院单晶研究所，*STC*“单晶研究所”，乌克兰哈尔科夫 *Nauky* 大道 *60* 号，邮编 *61001*

摘要

我们研究了通过磁控共溅射沉积的超薄非晶 $Mo_{50}Si_{50}$ 薄膜的厚度依赖表面形貌与电输运。对 Si/SiO_2 基底上覆有硅封帽层的异质结构进行原子力显微镜测量后发现，在所研究的厚度范围内，表面均较为平滑，均方根粗糙度低于 0.2 纳米；其厚度依赖性呈非单调变化，并在 1.92 纳米处达到最小值。对于标称厚度约为 1.9–5 纳米的薄膜，室温方块电阻近似呈反厚度依赖关系；而当厚度低于约 1.5–2 纳米时，这种标度关系出现明显偏离。温度依赖测量进一步显示，30 纳米薄膜发生超导转变，而 1.54 纳米薄膜在冷却时电阻显著增加，这清楚地表明发生了超导体-绝缘体转变。在 2–20 K 范围内，1.54 纳米薄膜的方块电导呈现可重复的对数温度依赖关系，$G_s(T)=G_0+B\ln(T/T_0)$，这与强无序准二维导体中扩散输运的量子修正相符。这些结果揭示了超薄 MoSi 中对厚度敏感的输运机制，同时表明相应异质结构仍保持较为平滑的表面形貌。

关键词：非晶 *MoSi*、超薄薄膜、薄膜生长、原子力显微镜、方块电阻、超导器件

1. 引言

自安德森的研究以来，人们一直在研究结构无序材料中的超导性。安德森指出，强非磁性弹性散射与常规 s 波超导相容 [1]。随后，实验研究证实了非晶过渡金属合金薄膜中的超导性 [2]。在非晶 Mo-Si 系统中，人们在溅射沉积合金中发现了超导性和较高的上临界场[3], ，并研究了不同合金成分下正常态输运与超导性质之间的关联 [4]。后续研究进一步表征了非晶 MoSi 基薄膜的超导性质 [5], ；更广泛而言，二元钼化合物也被视为适用于基础超导研究和器件应用的潜力材料 [6]。近期研究证实，非晶 MoSi 是一种极具吸引力的薄膜超导体，因为它兼具结构均匀性、相对较高的正常态电阻率，以及仅数纳米厚的薄层中仍具有超导性 [7]。

这些性质使 MoSi 特别适用于超导纳米线单光子探测器（SNSPD）及相关量子光子器件。首批 SNSPD 采用 NbN 纳米线实现 [8]。随后，研究人员利用厚度为 4 纳米的非晶 MoSi 薄膜实现了单光子探测 [9], ，之后 MoSi SNSPD 兼具高探测效率和低时间抖动 [10]。非晶 MoSi 纳米线探测器与纳米光子波导的集成也已得到实现 [11]。更广泛地说，SNSPD 已发展成为量子通信、传感、成像和集成量子光子学的重要探测器平台 [12]。

当 MoSi层减薄至仅几纳米时，薄膜厚度便成为一个关键参数。结构研究表明，在非晶 MoSi 中，约 1 纳米以下存在短程原子关联，而在约 1-3 纳米的尺度上存在中程有序 [7]。此外，对溅射沉积Mo-Si薄膜进行的原位研究表明，非晶态到晶态转变可能强烈依赖于成分和沉积厚度 [13]。对于厚度约为 1-5 纳米的薄膜，这些特征结构长度尺度已与薄膜总厚度相当，因此有必要详细研究在超薄极限下，形貌、电输运和超导性质是否仍遵循简单的厚度标度关系。

若干基本的薄膜关系式说明了这一状态为何在物理上具有重要意义。对于厚度为 (d) 的均匀导电层，方块电阻与电阻率的关系为 $R_s = \rho/d$。因此，若本征电阻率近似保持不变，乘积 $R_s d$ 也应近似保持恒定。厚度减小还会改变超导特征长度尺度。在二维极限 $d << \lambda$ 中，λ 为磁穿透深度，磁屏蔽可用 Pearl 长度 $\Lambda = 2\lambda^2/d$ 描述；随着薄膜变薄，该长度会显著增大 [14]。Pearl模型也已用于非晶MoSi薄膜中涡旋和迈斯纳屏蔽的实验测量 [15]。对于处于局域脏极限且温度较低的无序超导薄膜，方块动电感可近似为 $L_{\square}=\hbar R_s/\pi\Delta_0$，其中 Δ_0 为超导能隙 [16]。根据弱耦合BCS理论 $\Delta 0 \approx 1.764 k_B T_c$，因此 $L_{\square} = \hbar R_s/1.764\pi\, k_B T_c$[17]。然而，对于强无序超导体，与展宽的超导态密度相关的、偏离传统Mattis-Bardeen响应的现象，可能会改变这一简单的动电感估算 [18]。

方块电阻和动电感对薄膜厚度的强烈依赖性，与超导探测器和谐振器技术直接相关。人们已研究高动电感无序超导合金，用于动电感探测器 [19], ，而微波动电感探测器则利用超导电荷载流子的动电感响应实现高灵敏度辐射探测[20]。因此，控制超薄膜输运性质不仅对 SNSPD 至关重要，对于更广泛的超导电磁器件和量子器件同样重要。

与此同时，在足够薄的无序薄膜中，简单的 $R_s \sim 1/d$ 标度关系可能会失效。在低维无序导体中，偏离传统玻尔兹曼输运的现象可能源于安德森局域化和电子-电子相互作用效应 [21]。在超导薄膜中，即使薄膜在结构上仍保持均匀，增加无序度也可能进一步抑制超导性[22]。因此，在超薄极限下方块电阻的显著增加本身并不意味着薄膜生长呈颗粒状或物理上不连续。

在本研究中，我们考察了非晶 $Mo_{50}Si_{50}$薄膜的早期生长阶段，重点关注约 1–5 纳米的厚度范围。我们采用原子力显微镜表征 Si 覆盖异质结构中随厚度变化的表面形貌，并通过四点测量研究方块电阻及其偏离简单几何标度的情况。温度依赖电阻测量则提供了输运机制演变的补充信息。本研究旨在关联纳米尺度形貌与电输运，并确定与超薄非晶 MoSi 薄膜的形成及应用相关的特征厚度区间。

2. 方法

MoSi 薄膜采用直流磁控共溅射法，由钼靶和硅靶分别溅射沉积。使用了三种衬底：蓝宝石 Al_2O_3,、热氧化硅 Si/SiO_2 ，以及覆有氮化硅的硅 Si/Si_3N_4。Si/SiO2 衬底包含一层热生长的 SiO_2 层，厚度为 237 纳米。沉积前，将衬底制备成 10×10 mm^2 样品。本分析重点研究沉积在 Si/SiO_2 衬底上的薄膜，这类衬底常用于 SNSPD制备。

为去除衬底制备和操作过程中引入的残留颗粒及表面污染，使用超声波浴依次以丙酮、异丙醇和去离子水清洗样品。随后将清洗后的衬底装入高真空磁控溅射系统。通入氩气前，沉积室内的本底压力约为 $2x10^{-6}$ mbar；溅射期间的氩气工作压力则维持在 $2x10^{-3}$ mbar。未对衬底进行有意加热。

Mo 和 Si 分别由独立靶材同时溅射，因此可以分别控制施加于各磁控管的功率。沉积速率由相应的磁控管功率控制。当 P_{Si} = 101 W 和 P_{Mo}=64 W 时，校准沉积速率分别为 Si 的 6.6 nm/min 和 Mo 的 5 nm/min，对应的总名义生长速率约为 11.6 n m/min。当 P_{Si}=125 W 和 P_{Mo} =81 W 时，相应的沉积速率分别为 8.1 和 6.3 nm/min，总名义生长速率约为 14.4 nm/min。

沉积过程中，衬底托架持续旋转，以平均各靶材粒子通量的空间变化，从而提高衬底表面上薄膜厚度和成分的横向均匀性。研究了名义 Mo:Si 原子比为 50:50、MoSi 厚度各异的薄膜。对于 0.96 和 1.54 纳米薄膜，溅射功率分别为 P_{Si}=101 W 和 P_{Mo}=64 W，对应的校准总沉积速率约为 11.6 纳米/分钟。对于 1.92、2.4 和 5 纳米薄膜，溅射功率分别提高至 P_{Si}=125 W 和 P_{Mo}=81 W，对应的名义总沉积速率约为 14.4 纳米/分钟。名义薄膜厚度根据校准沉积速率确定。名义薄膜厚度的不确定度根据沉积工艺的不确定度估算，并在厚度相关分析中予以考虑，在图4和图5中以水平误差条表示。为保护超薄 MoSi 层免于氧化和环境暴露，所有薄膜均制备为多层结构，其中包含 5.4 纳米 Si 底层、厚度可变的 MoSi层以及 2.7 纳米硅覆盖层。

先前研究已证明，超薄溅射沉积MoSi薄膜具有非晶结构，其中包括用于超导单光子探测器的4纳米厚薄膜 [9]。此外，对Mo-Si的原位结构研究表明，非晶态到晶态转变取决于薄膜成分和厚度 [13]。综合这些结果，可以预期本研究考察的名义成分为$Mo_{50}Si_{50}$ 的薄膜，在所采用的室温溅射沉积条件下仍处于非晶态区域。由于本研究样品厚度较低，未对其非晶态进行独立的结构测定。

采用原子力显微镜（AFM），在约 0.9x0.9 μm^2 的区域内表征表面形貌，所有样品均采用相同的空间采样。除 Si/MoSi/Si异质结构外，还在相同条件下分析了两个参考表面：裸 Si/SiO_2 衬底，以及覆盖有 8.1 纳米硅层的 Si/SiO_2 衬底，

这对应于 MoSi异质结构中作为 5.4 纳米底层和 2.7 纳米覆盖层使用的硅总厚度。对原子力显微镜图进行平均平面扣除，随后进行四阶多项式背景校正，并根据校正后的形貌图确定表面参数S_q、S_a和S_z ；其中S_q 表示相对于平均表面平面的均方根高度偏差，S_a 表示高度偏差绝对值的算术平均值，而S_z 表示总峰谷高度范围。此前的薄膜研究也采用了类似的基于原子力显微镜的表面形貌分析 [23-25]。

采用共线四探针接触配置进行室温电学表征。根据薄导电层的标准四探针方法，使用针对样品尺寸和探针几何形状的适当几何修正因子，将测得的电阻值转换为方块电阻 R_s [26]。测量对象为沉积在 Al_2O_3, Si/SiO_2, 和 Si/Si_3N_4 衬底上的薄膜。

对于温度依赖测量的分析，使用根据同一样品的室温测量结果确定的与温度无关的几何因子，将测得的四端电阻$R(T)$转换为方块电阻。通过将 300 K 时测得的电阻与独立确定的室温片电阻$R_s(T)=R(T)\times[Rs(300,K)/R(300,K)]$进行匹配，获得转换因子。相应的方块电导计算为$G_s(T)=1/R_s(T)$。该过程假定在整个温度扫描过程中，样品几何形状和接触配置保持不变。

3. 结果

3.1. 厚度依赖的表面形貌

采用原子力显微镜研究了名义 MoSi 厚度分别为 0.96、1.92、2.4 和 5.0 纳米的 Si 覆盖的MoSi异质结构的表面形貌。由于 MoSi层覆盖有 2.7 纳米厚的硅覆盖层，测得的形貌反映的是完整异质结构的表面响应，而非裸露的MoSi层本身。定量比较采用了面积约为 0.9x0.9 μm^2 、空间采样相同的区域。具有代表性的大面积原子力显微镜形貌图见图1。

经过平均平面扣除和四阶多项式背景校正后，观察到表面粗糙度随 MoSi 厚度呈现显著的非单调变化（表1）。0.96 纳米结构的均方根粗糙度为 S_q=0.177 纳米，S_a=0.139 纳米，S_z=1.445 纳米。将 MoSi 厚度增加至 1.92 纳米后，表面显著平滑化，S_q 降至 0.098 纳米，降幅约为 44%。因此，在所研究的系列中，1.92 纳米样品的表面最为平滑。

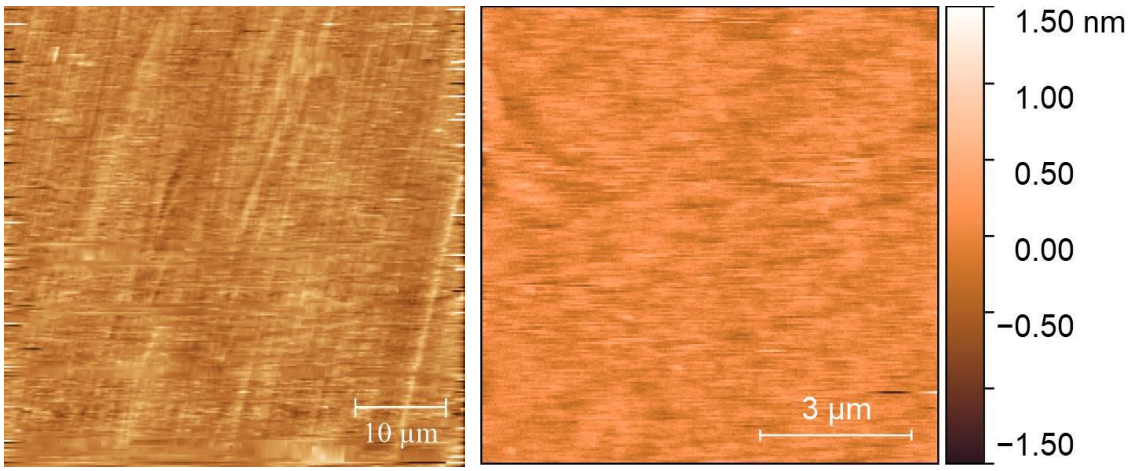


图1. 裸硅/SiO_2 衬底的AFM形貌（50x50 µm₂，左）以及硅/MoSi/Si异质结结构，名义 MoSi 厚度为 0.96 纳米（右）。色标表示表面高度。

厚度进一步增加至 2.4 纳米时，这一趋势明显逆转。均方根粗糙度增至 S_q=0.193 纳米，而S_a 和S_z 分别增至 0.152 纳米和 1.668 纳米。因此，2.4 纳米样品的均方根粗糙度几乎是 1.92 纳米结构的两倍。厚度为 5 纳米时，表面再次变得更加平滑，S_q=0.124 纳米，S_a=0.099 纳米，且S_z=1.028 纳米。

结构	名义 MoSi 厚度 , nm	S_q, nm	S_a, 纳米	S_z, 纳米
衬底（硅/SiO_2）	-	0.262	0.206	3.085
衬底（硅/SiO_2）/8.1-纳米硅	-	0.360	0.272	5.240
硅/MoSi/硅	0.96	0.177	0.139	1.445
硅/MoSi/硅	1.92	0.098	0.079	0.798
硅/MoSi/硅	2.40	0.193	0.152	1.668
Si/MoSi/Si	5.00	0.124	0.099	1.028

表1. 裸 Si/SiO_2 衬底、8.1 纳米 Si 参考层，以及在 Si/SiO_2 衬底上具有不同名义 MoSi 厚度的 Si 覆盖 MoSi 异质结构的原子力显微镜表面粗糙度参数。

因此，表面形貌并非通过简单的单调平滑化或粗糙化演变。相反，在 1.92 纳米处出现明显的粗糙度最小值，随后在 2.4 纳米处显著粗糙化，并在 5 纳米处进一步平滑化。作为比较，裸 Si/SiO_2衬底的S_q=0.262 纳米、S_a=0.206 纳米和S_z=3.085 纳米，而 8.1 纳米 Si 参考层的数值分别为S_q=0.360 纳米、S_a=0.272 纳米和S_z=5.240 纳米。因此，所有受研究的 Si/MoSi/Si 异质结构的均方根粗糙度均低于两个参考表面。即使是 2.40 纳米结构（MoSi 厚度系列中的粗糙度最大值），其表面仍明显比裸衬底和仅含 Si 的参考层更平滑。

3.2. 表面高度剖面分析

从每幅图像中心附近处理后的原子力显微镜图中提取了具有代表性的垂直高度剖面。所有样品的剖面分析长度均约为902纳米，为比较表面形貌的局部垂直和横向特征提供了另一种方法（表2）。

d，纳米	R_a，纳米	R_q，纳米	R_t，纳米	R_{sk}	R_{ku}	S_m，纳米	λ_q，纳米	Δ_q
0.96	0.143	0.188	1.107	0.236	3.494	17.69	18.57	0.0636
1.92	0.075	0.092	0.531	0.094	2.916	16.40	18.83	0.0308
2.40	0.122	0.161	1.041	0.115	4.014	15.03	16.92	0.0598
5.00	0.086	0.108	0.632	−0.089	3.049	18.41	19.61	0.0347

表2. 在不同标称 MoSi 厚度下沉积于 Si/SiO_2 衬底上的 Si覆盖的MoSi异质结构，其代表性原子力显微镜高度剖面所获得的粗糙度、空间及混合参数。此处，d为名义 MoSi 厚度；R_a 为剖面的算术平均粗糙度；R_q 为均方根（RMS）剖面粗糙度；R_t 为粗糙度剖面的总峰谷高度；R_{sk} 为剖面偏度系数；R_{ku} 为剖面峰度；S_m 为剖面不规则性之间的平均间距；λ_q 为剖面的均方根波长，用于表征表面变化的横向尺度；Δ_q 为均方根剖面斜率。

剖面分析重现了面域AFM参数所显示的非单调趋势（图2）。厚度从0.96纳米增至1.92纳米时，R_q 从0.188纳米降至0.092纳米，R_t从1.107纳米降至0.531纳米，降幅分别约为51%和52%。与此同时，λ_q几乎保持不变，仅从18.57纳米变为18.83纳米，而均方根斜率Δ_q 则从0.0636降至0.0308。因此，从0.96纳米到1.92纳米的转变主要表现为表面特征垂直振幅和局部陡峭程度的降低，而非其特征横向尺度发生显著变化。

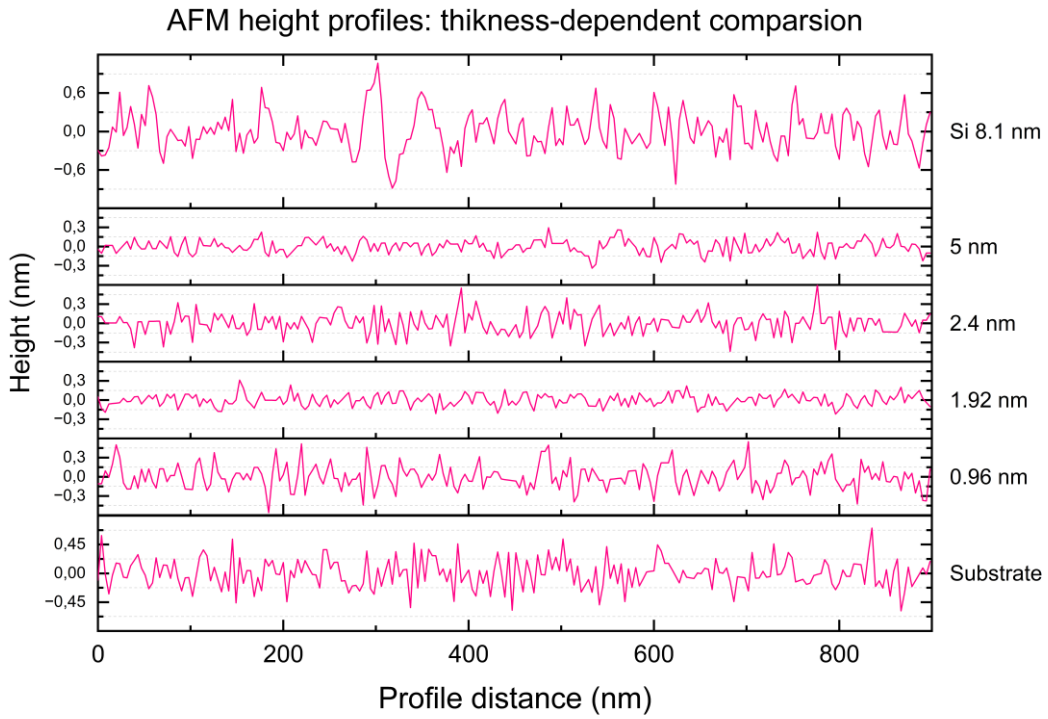


图2. 裸 Si/SiO_2 衬底、8.1 纳米 Si 参考层，以及标称 MoSi 厚度分别为 0.96、1.92、2.4 和 5.0 纳米的 Si覆盖的MoSi异质结构的代表性原子力显微镜高度剖面。所有剖面均在相近距离范围内提取，用于展示参考结构和含 MoSi 结构中局部表面高度变化的演变。

在 2.4 纳米处，R_q 增加至 0.16 纳米，R_t 增加至 1.04 纳米。均方根斜率同时增至 0.0598，而 λ_q降至 16.92 纳米。高度分布也发生变化：R_{ku}从 1.92 纳米处的 2.92 增加至 2.4 纳米处的 4.01，表明明显的局部高度突变所占的贡献更大。

在 5 纳米处，R_q 再次降至 0.11 纳米，R_t 降至 0.63 纳米。均方根斜率降至 0.035，而 λ_q增至 19.61 纳米。峰度恢复至 R_{ku}=3.05，接近近似高斯高度分布所预期的数值。

因此，剖面分析证实了面域原子力显微镜测量所确定的序列。2.4纳米结构的区别不仅在于增强的垂直粗糙度，还在于更陡峭的局部特征、更短的特征横向尺度，以及极端高度偏差所占比例更大。

3.3. 室温电输运

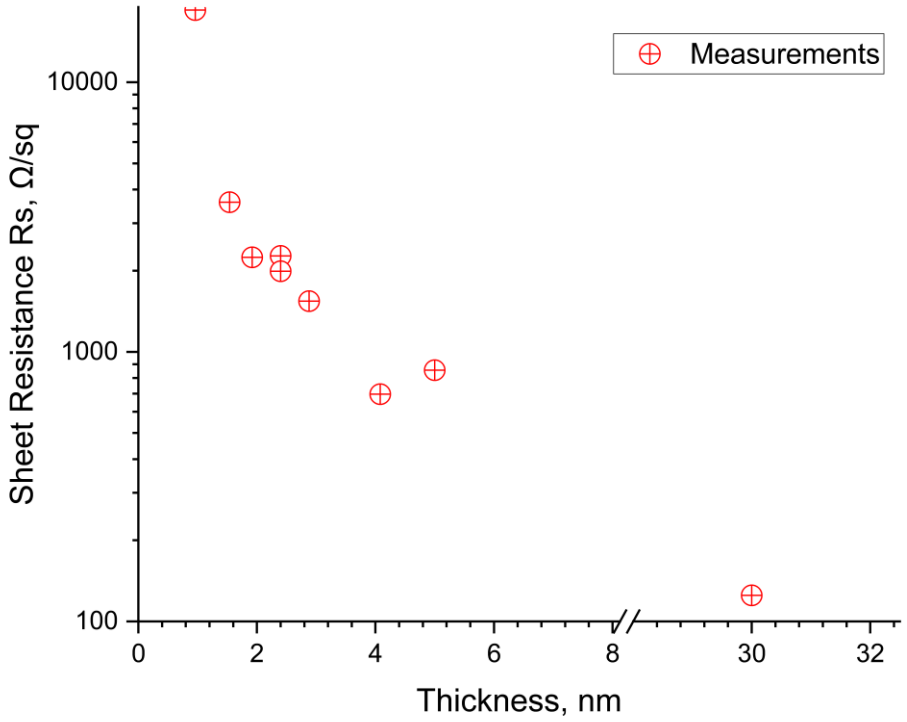
沉积在 Si/SiO_2 上的 MoSi薄膜，其室温片电阻随着标称薄膜厚度的增加而显著降低。测得的R_s 值汇总于表3中。

标称 d，纳米	Ω/平方
0.96 18518	
1.54	3589
1.92	2241
2.40	2269
2.40	1990
2.88	1543
4.08	696
5.00	855
30.0	125

表3. 沉积在 Si/SiO_2 上的 $Mo_{50}Si_{50}$ 薄膜的室温片电阻随标称厚度的变化。

主要趋势是，随着 MoSi厚度增加，方块电阻显著降低（图3）。在超薄范围内，R_s 从0.96纳米时的1.85x10^4 Ω/平方降至1.54纳米时的3589 Ω/平方，以及1.92纳米时的2241 Ω/平方。

两个标称厚度为 2.4 纳米的样品，其方块电阻分别为 2269 和 1990 Ω/sq，相差约 14%。由于薄膜厚度是根据校准后的沉积参数确定的，而非对每个单个样品分别进行独立厚度测量，因此这种差异可能部分源于实际沉积厚度的不确定性。因此，在厚度相关分析中保留了这一不确定性，并在图4和图5中以水平误差条表示。



Fig图 3. 沉积在 Si/SiO_2 衬底上的 Mo50Si50 薄膜方块电阻的厚度依赖性 es.

为定量评估厚度依赖性，我们将约 1.9–5 纳米范围内的数据与幂律关系 $R_s = Ad^{-n}$ 进行比较。采用 1.92、2.40、2.88 和 5.00 纳米的数据点，并将额外的 2.40 纳米样品的 R_s=1990 Ω/sq 纳入计算，得到 $n = 1.04$，$R^2 = 0.988$。因此，$R_s \sim d^{-1.04} \approx d^{-1}$，这接近于横向连续薄膜在电阻率近似不随厚度变化时所预期的厚度反比关系。Erbe等人曾报道，在硅基底上沉积的 MoSi薄膜也表现出非常接近于 1 的标度指数。通过使用普适标度关系 $T_c d = A R_s^{-B}$，他们得到 B=1.06±0.11，对应的方块电阻指数在统计上与 1 一致[27]。尽管这一关系同时涉及 T_c、d 和 R_s，因此与本文对室温下 $R_s(d)$ 的分析并不完全相同，但接近于 1 的指数与该厚度范围内方块电阻随薄膜厚度近似呈反比变化相符。4.08 纳米的数据点明显偏离这一趋势，因此未纳入幂律拟合。目前尚无该样品的独立厚度验证，因此应将这一偏差视为样品特有的实验变异，而非存在另一种输运机制的证据。

相比之下，厚度低于约 1.5–2 纳米时方块电阻大幅增加，无法用相同的厚度反比标度关系描述，表明进入了厚度敏感型输运机制。

3.4. 有效电阻率参数

为区分方块电阻中的几何因素与超薄层本征输运性质的变化，对乘积 $\rho_{eff} = R_s * d$ 进行了评估。对于均匀连续薄膜，ρ_{eff} 对应于电阻率。对于最薄的薄膜，由于均匀块体导体这一假设可能不再完全成立，因此本文将其称为有效电阻率类参数（表4）。

名义厚度 (d)，纳米	R_s, Ω/平方	R_s*d，μΩ·厘米
0.96	18518	1778
1.54	3589	553
1.92	2241	430
2.40	2269	545
2.40	1990	478
2.88	1543	444
4.08	696	284
5.00	855	428
30.00	125	375

表4. 沉积在 Si/SiO2 衬底上的 Mo50Si50 薄膜的名义厚度d、测得的方块电阻 R_s，以及计算得到的有效电阻率类参数R_s*d。

对于反厚度分析所用的 1.92、2.4、2.88 和 5 纳米薄膜，ρ_{eff}值主要分布在约 428-478 μΩ·厘米的范围内，平均值约为 445 μΩ·厘米，中位数为 437 μΩ·厘米。在这一厚度范围内，ρ_{eff} 值近乎恒定，这为幂律拟合所得的相同结果提供了另一种表示方式：方块电阻近似遵循$R_s \approx \rho_{eff}/d$。 最薄薄膜则呈现出明显不同的行为。当厚度为 1.54 纳米时，$\rho_{eff} \approx$ 553 μΩ·厘米；而在 0.96 纳米时，该值急剧增至 $\rho_{eff} \approx$ 1778 μΩ·厘米。因此，接近 1 纳米极限时 R_s 的大幅增加，无法仅用导电截面的减小来解释。相反，薄膜本身的有效输运性质会强烈依赖于厚度。因此，$R_s(d)$和 $\rho_{eff}(d)$的变化关系表明存在两种特征机制：当$d \gtrsim$ 1.9 纳米时，呈现近似反厚度机制；而在约 1.5–2 纳米以下，则呈现强烈依赖厚度的输运机制，如图4和图5所示。

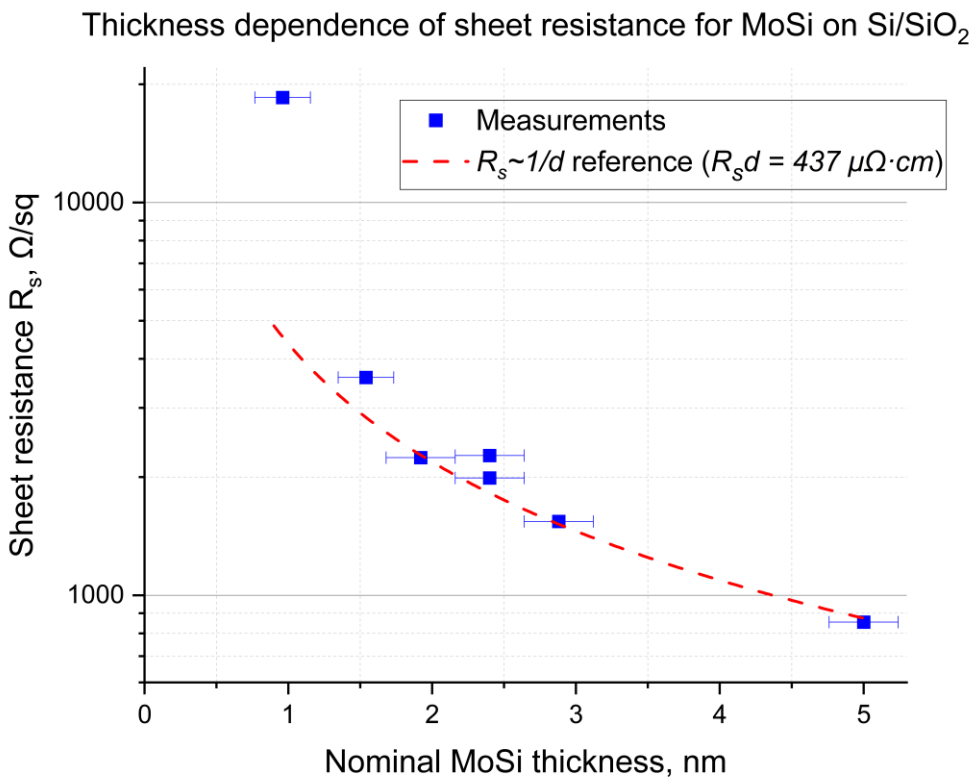


图4. 沉积在硅/SiO_2上的薄膜的室温片电阻 R_s 随名义 MoSi 厚度的变化。虚线表示 $R_s \sim d^{-1}$ ·cm 的参考行为。水平误差条表示与沉积工艺相关的名义薄膜厚度估计不确定性。

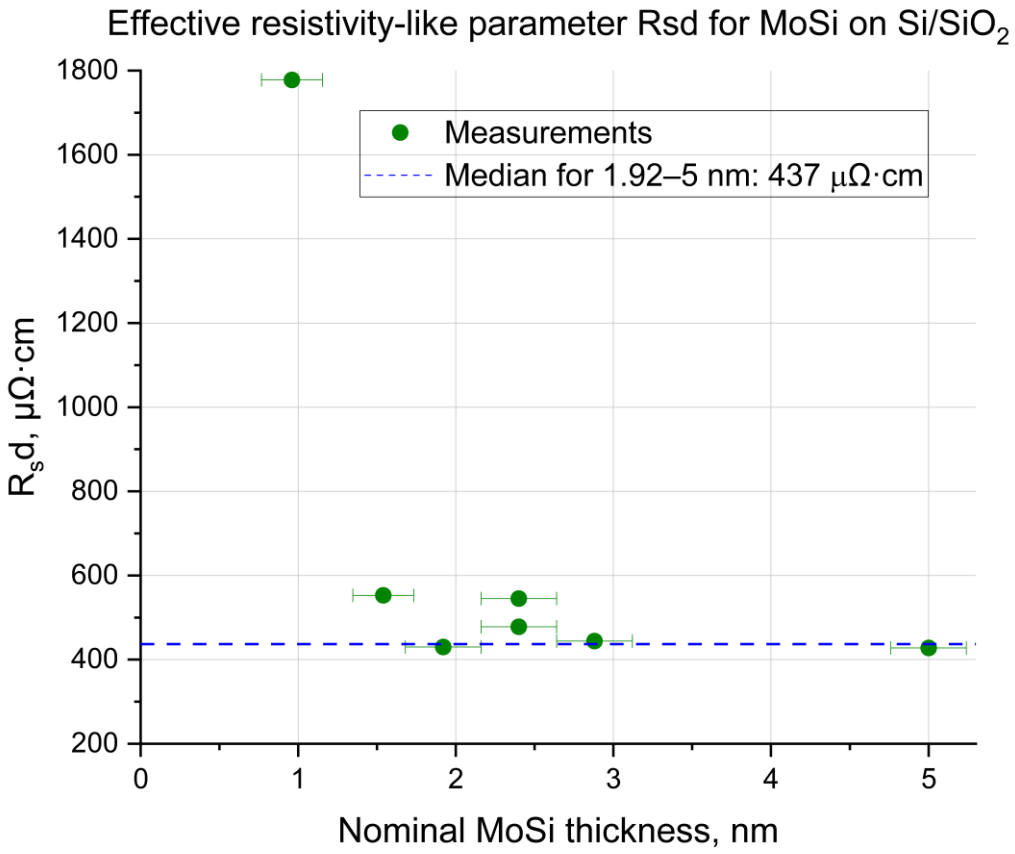


图5. 在硅/SiO_2 衬底上沉积的薄膜中，有效电阻率类参数 ρ_{eff} 随名义 MoSi 厚度的变化关系。虚水平线表示厚度范围为 1.92–5 纳米时的中位数 R_s*d 值 437 μΩ·厘米。水平误差条表示与沉积工艺相关的标称薄膜厚度估计不确定性。

3.5. 温度依赖电阻

温度依赖电阻测量揭示了厚膜与超薄膜极限之间的显著差异（图6）。为了独立于绝对电阻值比较温度依赖曲线的形状，数据已按室温电阻归一化，$R_{norm}(T)=R(T)/R(300\ K)$. 沉积在 Si/$SiO_2$ 上的 1.54 纳米和 30 纳米薄膜的绝对室温片电阻分别为3589 Ω/sq 和 125 Ω/sq，相差近 29 倍。在正常态温度范围的大部分区间内，30 纳米薄膜的归一化电阻仅有微弱变化，随后在低温下因超导转变而急剧下降。相比之下，1.54 纳米薄膜表现出显著的负电阻温度系数，$dR/dT < 0$ 其电阻随冷却持续增大。在图示的最低温度下，归一化电阻约为$R/R300$~1.8，相当于比室温值增加约 80%。在测量温度范围内，1.54 纳米薄膜未观察到超导转变。低温响应的显著差异表明，将 MoSi厚度从 30 纳米减小至约 1.5 纳米，不仅会大幅提高室温片电阻，还会使电输运特性发生定性变化。

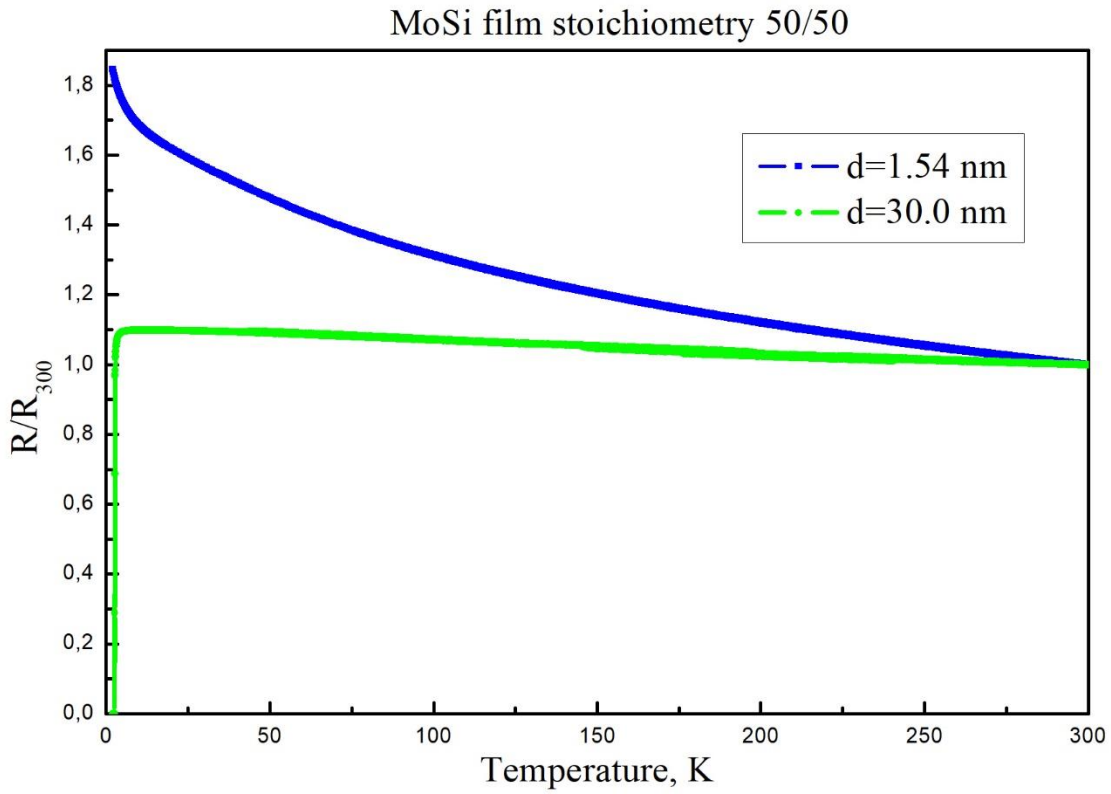


图6. 标称厚度为 1.54 和 30 纳米的 Mo_{50}硅$_{50}$ 薄膜的归一化电阻 R/R_{300} 随温度的变化。两个样品表现出定性上不同的温度依赖输运行为。

4. 讨论

形貌和电学测量结果共同揭示了超薄MoSi薄膜随厚度变化而发生的显著演变。对于标称厚度约为 1.9–5 纳米的薄膜，方块电阻通常遵循连续导电层所预期的厚度倒数关系，$R_s = \rho/d$。对该厚度范围内代表性数据的幂律分析得出，指数接近 1，$R_s \sim d^{-1.04}$，表明主要的厚度依赖性大致符合几何标度。有效电阻率类参数 $\rho_{eff} = R_s{*}d$在该厚度范围内的大多数薄膜中均接近 440 μΩ·cm，进一步支持了这一结论。由于只有对于均匀连续薄膜，$R_s{*}d$才可解释为材料电阻率，因此本文将其视为有效输运参数，而非严格意义上的本征电阻率。

当名义 MoSi 厚度降低至约 1.5-2 纳米以下时，行为会出现质的不同。对于 1.54 纳米薄膜，$R_s{*}d$ 增至约553 μΩ·cm，而 0.96 纳米薄膜则达到约 1778 μΩ·cm。因此，最薄薄膜的方块电阻快速增加，不能仅归因于导电截面的减小。相反，数据表明，无序、低维效应、界面相关散射以及可能的局域化效应对电输运的影响逐渐增强。

在其他均匀非晶超导薄膜中，也观察到了类似的厚度依赖电子行为。Graybeal 和 Beasley 报道，超薄非晶 MoGe 薄膜即使在形貌均匀性保持至约 2 纳米时，仍表现出与局域化相关的输运行为；同时，随着方块电阻增加，T_c 受到系统性抑制 [28]。在 MoSi 中，Banerjee 等人拟合得到临界厚度 d_c=1.46±0.15 纳米；根据其模型，低于该厚度时超导性预计会消失 [7]。随后，Erbe等人使用 Simonin 厚度标度模型，得到硅衬底上 MoSi薄膜的 d_c=1.38±0.03 纳米，以及砷化镓衬底上薄膜的 1.87±0.10 纳米 [27]。尽管这些研究与本研究样品的成分、衬底和沉积条件各不相同，但这些特征厚度均处于约 1.5–2 纳米的范围内；在这一范围内，本研究的 $R_s(d)$ 数据开始明显偏离反厚度标度关系。

温度依赖电阻测量独立地支持了这一转变。30 纳米 MoSi薄膜在冷却时正常态电阻仅相对小幅增加，并在约 2.6–2.7 K 时发生急剧的超导转变。相比之下，1.54 纳米薄膜的电阻随温度降低而显著增加，且直至约 2 K 仍未出现超导转变。冷却与升温测量结果高度一致，表明这些温度依赖性具有可重复性，且不存在明显的热滞后。1.54 纳米薄膜中未观察到转变，这在定性上与高电阻均匀薄膜中预期的、由无序驱动的超导性抑制现象相符 [22, 28]。

为探究1.54 纳米薄膜电阻上翘的起因，我们采用多种输运模型分析了低温数据。将方块电导 $G_s = 1/R_s$ 绘制为对数温度的函数时，得到的吻合度最高（图7）。在 2-20 K 范围内，电导率可由 $G_s(T) = G_0 + B*ln(T/T_0)$很好地描述，其中以 T_0=1 K 作为参考温度。线性拟合得到，冷却时 B = 9.33 μS，升温时 B = 9.31 μS，R^2=0 分别为 0.99917 和 0.99918。两次温度扫描得到的斜率几乎相同，表明对数温度依赖关系具有很高的可重复性。

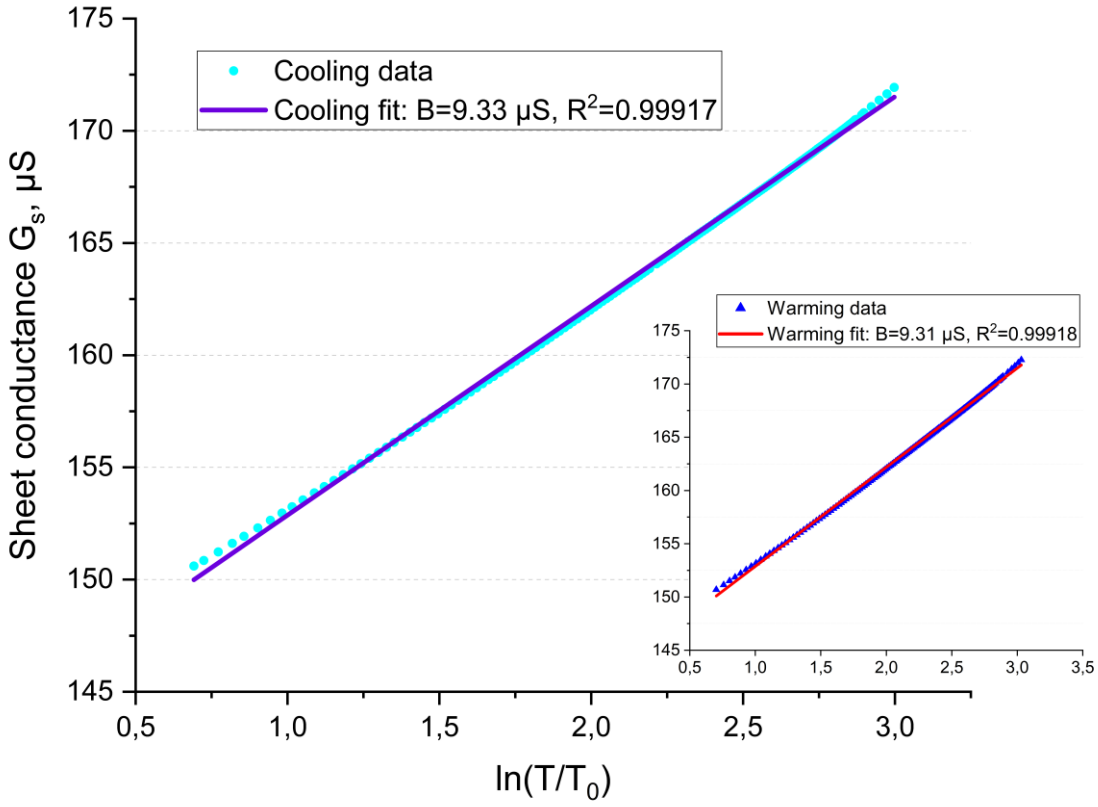


图7. 1.54 纳米 MoSi薄膜的方块电导 G_s 随低温范围 2-20 K 内 $ln(T/T_0)$ 的变化。图中同时显示冷却和升温数据，以及根据 $G_s(T)=G_0+B*ln(T/T_0)$ 进行的线性拟合，其中 T_0=1 K。两次温度扫描的对数斜率几乎相同，且决定系数较高，表明低温下的对数电导依赖关系具有良好的可重复性。

电导率的对数修正是无序准二维导体的典型特征。Altshuler、Aronov 和 Lee 指出，无序二维费米系统中的电子-电子相互作用会导致电导率出现对数修正 [29]。在无序薄膜中，弱局域化通过相干背向散射和量子干涉构成量子修正的另一来源 [30], , 而无序导体中局域化与相互作用效应之间更广泛的相互影响，则见参考文献 [21]。这两类二维量子修正的特征电导尺度约为 $e2/(\pi h) \approx 12.33\ \mu S$。因此，实验得到的对数斜率约为 9.3 μS，与该尺度处于同一数量级，对应的有效无量纲前因子约为 0.75。尺度上的这一吻合支持这样一种解释：低温电阻上翘源于扩散输运的量子修正，而非电阻的纯几何性增加。

Mo/Si多层膜中密切相关的量子修正行为也已通过实验进行研究。Buchstab等人将此类结构的温度依赖性和磁阻归因于弱局域化、电子-电子相互作用和超导涨落修正，并观察到输运行为中的维度交叉 [31]。尽管这些多层结构在物理上不同于本文研究的非晶MoSi合金，但它们表明，对数型修正和干涉相关修正在基于Mo-Si的无序导电系统中可能十分重要。

研究还考察了 1.54 纳米薄膜在 2-20 K 范围内的替代输运模型。这一比较尤为相关，因为此前已有研究报道溅射非晶 MoSi 薄膜存在莫特变程跳跃 [32]。本文测试的模型包括二维莫特变程跳跃，$R(T) = R_0\exp[(T_M/T)^{1/3}]$， 该模型基于局域电子态之间的跳跃 [33], ；以及 Efros-Shklovskii 跳跃，$R(T)=R_0\exp[(T_{ES}/T)^{1/2}]$ ，该模型考虑了局域电子之间相互作用所产生的库仑能隙 [34]。研究还考察了简单的热激活阿伦尼乌斯关系。与对数电导表示相比，相应的线性化表示与实验温度依赖性的吻合较差，而从跳跃拟合中提取的特征温度则远低于所研究的温度范围。因此，与所测试的热激活或变程跳跃描述相比，现有数据更符合扩散输运中的对数型量子修正。

然而，目前的零场测量无法明确区分弱局域化和电子-电子相互作用的相对贡献。两种机制都可能在无序二维导体中产生对数形式的温度修正 [21, 29, 30]。磁输运测量将提供重要的补充检验，因为磁场会抑制与弱局域化相关的量子干涉贡献 [30], ，而结合电阻和磁阻测量此前已被用于区分 Mo/Si 系统中的量子修正 [31]。

原子力显微镜测量为超薄异质结构的形貌演变提供了互补信息。所有研究的 Si/MoSi/Si 结构均表现出较低的表面粗糙度，S_q 值介于 0.098 和 0.193 纳米之间。重要的是，这些数值低于裸 Si/SiO_2 衬底（S_q=0.262 纳米）和 8.1 纳米 Si 参考层（S_q=0.36 纳米）的测量值。因此，MoSi 厚度系列中的非单调粗糙度演变完全发生在相对平滑的表面形貌状态内。

因此，粗糙度从 1.92 纳米增加到 2.40 纳米，应理解为 MoSi 系列内部的相对变化，而非表面逐渐劣化。即使是 2.40 纳米的结构，其表面仍比两个参考表面都更平滑。因此，与仅含 Si 的参考样品相比，在 Si 底层与覆盖层之间加入超薄 MoSi 层显著改变了最终表面形貌，这与异质结构具有平滑的最终表面形貌相一致。

原子力显微镜探测的是上方的硅覆盖层，而非直接探测埋藏的 MoSi 层，因此无法单独确认 MoSi 薄膜的微观连续性。此外，8.1 纳米的 Si 参考样品是连续 Si 层，而异质结构中相同的 Si 总厚度则分为 5.4 纳米的底层和 2.7 纳米的覆盖层。尽管如此，含 MoSi 结构的粗糙度显著较低，表明仅凭 Si 总沉积厚度无法解释其平滑的最终表面，也说明 MoSi 中间层的加入改变了完整异质结构的表面演变。

总体而言，结合$R_s(d)$、$\rho_{eff}(d)$和$R(T)$的结果可以看出，存在两种输运机制。标称厚度约为 1.9–5 nm 的薄膜仍接近连续、高度无序导电层所预期的反厚度标度关系；而进一步减小 MoSi厚度，则会导致有效电阻参数迅速增大，并出现显著的低温电导修正。结合

1.54 纳米薄膜中未出现超导转变这一现象，呈对数变化的$G_s(T)$关系表明，与传统的热激活绝缘体或跳跃绝缘体相比，超薄区域更适合描述为具有显著量子修正的强无序扩散导体[21, 22, 28–31]。

5. 结论

通过结合原子力显微镜和电输运测量，对超薄非晶 $Mo_{50}Si_{50}$ 薄膜进行了研究。在所研究的厚度范围内，Si 覆盖异质结构始终保持平整，均方根粗糙度低于 0.2 纳米，并在 1.92 纳米处达到最小值。

对于约 1.9–5 纳米的标称MoSi厚度，方块电阻仍接近 $R_s \sim d^{-1}$，而当厚度低于约 1.5–2 纳米时，则观察到明显偏离这一标度关系的现象。1.54 纳米薄膜在冷却过程中还表现出显著的电阻增加，并且在低至约 2 K 的温度下仍未出现超导转变。

在 2–20 K 范围内，其方块电导呈近似对数温度依赖关系，$G_s(T)=G_0+B*ln(T/T_0)$，且降温和升温斜率几乎相同。与经过测试的热激活模型或跳跃模型相比，这种行为更符合扩散输运的量子修正。

总体而言，结果表明，超薄 MoSi 在保持平滑形貌的同时，其电子输运会随着厚度发生显著演变。

致谢

本工作得到乌克兰国家研究基金会项目编号 22.07/0044 的资助，以及 IEEE “ Magnetism for Ukraine 2025-2026”项目编号 9918 的资助。作者衷心感谢 M. Mikhailov 在整个工作期间开展富有成效的讨论、提供宝贵的咨询和给予协助。我们衷心感谢斯洛伐克布拉迪斯拉发夸美纽斯大学的 Miroslav Grajcar 教授及其团队开展低温测量。

参考文献

1. Anderson, P. W. 脏超导体理论。《固体物理与化学杂志》 **11**, 26–30 (1959). DOI: 10.1016/0022-3697(59)90036-8. 2. Collver, M. M.; Hammond, R. H. “非晶态”过渡金属合金薄膜中的超导性。《物理评论快报》 **30**, 92–95 (1973). DOI: 10.1103/PhysRevLett.30.92. 3. Ikebe, M.; Muto, Y.; Ikeda, S.; Fujimori, H.; Suzuki, K. 块体非晶态 Mo-Si 和 Mo-C 合金的超导性。《物理学*B+C* **107**, 387–388 (1981). DOI: 10.1016/0378-4363(81)90499-X. 4. Edelstein, A. S. 等. 非晶态钼硅合金的超导态和正常态性质之间的相关性。《固态通信》 **41**, 139–142 (1982). DOI: 10.1016/0038-1098(82)91052- 3. 5. Kubo, S. 用于阿布里科索夫涡旋存储器的非晶 MoX（X = Si, Ge）合金薄膜的超导性质。《应用物理学杂志》 **63**, 2033–2045 (1988). DOI: 10.1063/1.341105. 6. Shapovalov, A. P.; Belogolovskii, M. O.; Boliasova, O. O.; Kordyuk, O. A. 二元钼化合物：超导物理新领域及实际应用的前景材料。《金属物理学进展》**22**, 352–381 (2021). DOI: 10.15407/ufm.22.03.352. 7. Banerjee, A. 等. 非晶态硅化钼（MoSi）超导薄膜和纳米线的表征。《超导科学与技术》 **30**, 084010 (2017). DOI: 10.1088/1361-6668/aa76d8. 8. Gol’tsman, G. N.; Okunev, O.; Chulkova, G.; Lipatov, A.; Semenov, A.; Smirnov, K.; Voronov, B.; Dzardanov, A.; Williams, C.; Sobolewski, R. 皮秒超导单光子光学探测器。《应用物理快报》 **79**, 705–707 (2001). DOI: 10.1063/1.1388868.

9. Korneeva, Yu. P.; Mikhailov, M. Yu.; Pershin, Yu. P.; Manova, N. N.; Divochiy, A. V.; Vakhtomin, Yu. B.; Korneev, A. A.; Smirnov, K. V.; Sivakov, A. G.; Devizenko, A. Yu.; Gol'tsman, G. N. 采用MoSi薄膜制成的超导单光子探测器。《超导科学与技术》27, 095012 (2014). DOI: 10.1088/0953- 2048/27/9/095012. 10. Caloz, M.; Perrenoud, M.; Autebert, C.; Korzh, B.; Weiss, M.; Schönenberger, C.; Warburton, R. J.; Zbinden, H.; Bussières, F. 非晶超导纳米线单光子探测器的高探测效率和低时间抖动。《应用物理快报》112, 061103 (2018). DOI: 10.1063/1.5010102. 11. Häußler, M.; Mikhailov, M. Yu.; Wolff, M. A.; Schuck, C. 与纳米光子波导集成的非晶超导纳米线单光子探测器。《APL光子学》5, 076106 (2020). DOI: 10.1063/5.0004677. 12. Esmaeil Zadeh, I.; Chang, J.; Los, J. W. N.; Gyger, S.; Elshaari, A. W.; Steinhauer, S.; Dorenbos, S. N.; Zwiller, V. 超导纳米线单光子探测器：发展历程、最新进展、未来发展与应用展望。《应用物理快报》118, 190502 (2021). DOI: 10.1063/5.0045990. 13. Krause, B.; Abadias, G.; Michel, A.; Wochner, P.; Ibrahimkutty, S.; Baumbach, T. 纳米尺度硅化物薄膜溅射沉积过程中厚度诱导结晶与应力累积的直接观测。《ACS应用材料与界面》8, 34888–34895 (2016). DOI: 10.1021/acsami.6b12413. 14. Pearl, J. 携带量子化磁通子的超导薄膜中的电流分布。《应用物理快报》5, 65–66 (1964). DOI: 10.1063/1.1754056. 15. Ceccarelli, L.; Vasyukov, D.; Wyss, M.; Romagnoli, G.; Rossi, N.; Moser, L.; Poggio, M. 对非晶MoSi薄膜中单个超导涡旋的钉扎和排出的成像。《物理评论B》100, 104504 (2019). DOI: 10.1103/PhysRevB.100.104504. 16. Mattis, D. C.; Bardeen, J. 正常金属与超导金属中的反常趋肤效应理论。《物理评论》111, 412–417 (1958). DOI: 10.1103/PhysRev.111.412. 17. Bardeen, J.; Cooper, L. N.; Schrieffer, J. R. 超导理论。《物理评论》108, 1175–1204 (1957). DOI: 10.1103/PhysRev.108.1175. 18. Baránek, M.; Neilinger, P.; Manca, D.; Turutanov, O. G.; Grajcar, M. 通过传输线光谱研究强无序超薄MoC超导薄膜的电导率。《物理学C：超导及其应用》635, 1354749 (2025). DOI: 10.1016/j.physc.2025.1354749. 19. Calvo, M. 等. 用于动能电感探测器的铌硅合金。《低温物理学杂志》176, 518–523 (2014). DOI: 10.1007/s10909-013-1072-6. 20. Baselmans, J. J. A. 动能电感探测器。《低温物理学杂志》167, 292–304 (2012). DOI: 10.1007/s10909-011-0448-8. 21. Lee, P. A.; Ramakrishnan, T. V. 无序电子系统。《现代物理评论》57, 287–337 (1985). DOI: 10.1103/RevModPhys.57.287. 22. Finkel'stein, A. M. 均匀无序系统中的超导性抑制。《物理学B：凝聚态》197, 636–648 (1994). DOI: 10.1016/0921-4526(94)90267-4. 23. Kryvonogov, S. I.; Krukhmalev, A. A.; Nizhankovskiy, S. V.; 等. 通过热化学氮化制备的改性AlN/蓝宝石衬底的表面形貌特征。《结晶学报告》60, 138–142 (2015). DOI: 10.1134/S1063774515010125. 24. Rogacheva, E. I.; Budnik, A. V.; Dobrotvorskaya, M. V.; Fedorov, A. G.; Krivonogov, S. I.; Mateychenko, P. V.; Nashchekina, O. N.; Sipatov, A. Yu. 热蒸发 Bi_2Te_3 薄膜的生长与结构。《薄固体薄膜》612, 128–134 (2016). DOI: 10.1016/j.tsf.2016.05.046. 25. Vovk, E. A.; Budnikov, A. T.; Nizhankovskiy, S. V.; Krivonogov, S. I.; Dobrotvorska, M. V.; Tkachenko, V. F.; Mateychenko, P. V. 通过蓝宝石热化学氮化获得的AlN/Al_2O_3 模板中氮化物层的结构和元素组成。《表面研究杂志：X射线、同步辐射与中子技术》9, 1178–1183 (2015). DOI: 10.1134/S1027451015060221. 26. Smits, F. M. 用四探针法测量方块电阻。《贝尔系统技术杂志》37, 711–718 (1958). DOI: 10.1002/j.1538-7305.1958.tb03883.x. 27. Erbe, M.; Berrazouane, R.; Geyer, S.; Stasi, L.; van der Brugge, F.; Gras, G.; Schmidt, M.; Wieck, A. D.; Ludwig, A.; Bussières, F.; Warburton, R. J. 用于片上集成的砷化镓基MoSi超导纳米线单光子探测器。arXiv:2312.00528 (2023). DOI: 10.48550/arXiv.2312.00528. 28. Graybeal, J. M.; Beasley, M. R. 超薄非晶超导薄膜中的局域化与相互作用效应。《物理评论B》29, 4167(R) (1984). DOI: 10.1103/PhysRevB.29.4167. 29. Altshuler, B. L.; Aronov, A. G.; Lee, P. A. 二维无序费米系统中的相互作用效应。《物理评论快报》44, 1288–1291 (1980). DOI: 10.1103/PhysRevLett.44.1288. 30. Bergmann, G. 薄膜中的弱局域化：传导电子的飞行时间实验。《物理学报告》107, 1–58 (1984). DOI: 10.1016/0370-1573(84)90103-0. 31. Buchstab, E. I.; Butenko, A. V.; Fogel, N. Ya.; Cherkasova, V. G.; Rosenbaum, R. L. Mo/Si多层膜的电阻量子修正。《物理评论B》50, 10063–10068 (1994). DOI: 10.1103/PhysRevB.50.10063. 32. Liu, Z.; Luo, B.; Hu, J.; Xing, C. 非晶钼硅化物薄膜中的输运机制。《固体物理与化学杂志》149, 109818 (2021). DOI: 10.1016/j.jpcs.2020.109818.

33. Mott, N. F. 非晶态材料中的导电。III. 赝能隙中的局域态以及导带和价带边缘附近的局域态。《哲学杂志》 **19**, 835–852 (1969). DOI: 10.1080/14786436908216338. 34. Efros, A. L.; Shklovskii, B. I. 无序系统中的库仑能隙和低温电导率。《物理学杂志 *C*：固体物理》 **8**, L49–L51 (1975). DOI: 10.1088/0022-3719/8/4/003.