# 观点和展望

# 常压下双层结构镍氧化物薄膜高温超导电性的 发现与研究展望<sup>\*</sup>

陈卓昱1)2)† 黄浩亮1)2) 薛其坤1)2)3)‡

(南方科技大学,量子功能材料全国重点实验室,物理系,深圳 518055)
2)(粤港澳大湾区量子科学中心,深圳 518045)
3)(清华大学物理系,北京 100084)

(2025年3月13日收到; 2025年4月20日收到修改稿)

近年来, 镍氧化物超导电性备受关注, 全球多个科研团队在常压和高压条件下, 发现了多种镍氧化物材料的超导电性. 来自中国和美国的研究团队通过独立、相异的研究路径, 发现了常压下双层 Ruddlesden-Popper结构镍氧化物薄膜的高温超导电性, 为深入研究高温超导机理提供了全新的平台. 中国团队基于自主发展的"强氧化原子逐层外延"技术, 制备出具有原子级平滑表面的纯相双层结构镍氧化物超导薄膜. 通过原位强氧化处理技术, 可在原子级平整的薄膜表面开展 ARPES 等表面敏感测量, 揭示超导相的电子结构特征, 为超导微观机理的深入研究提供关键实验基础. 通过协同开展晶格结构设计、稀土/碱土元素替代以及界面应力工程调控, 有望进一步提升该体系的超导转变温度.

关键词:高温超导,镍氧化物薄膜,强氧化原子逐层外延 PACS: 74.25.-q, 74.70.-b, 74.78.-w, 81.15.-z CSTR: 32037.14.aps.74.20250331

DOI: 10.7498/aps.74.20250331

# 1 引 言

量子现象通常存在于微观世界,而超导电性是 一种宏观量子现象.自 1911 年荷兰物理学家卡末 林-昂内斯 (Kamerlingh Onnes) 发现超导电性以 来<sup>[1]</sup>,超导研究就成为物理学家和材料科学家持续 关注的一个领域.超导材料在特定超导转变温度 (*T*<sub>C</sub>)以下电阻变为零,可以实现电流的零能耗传 输.超导体还具有完全抗磁性,通过磁通钉扎可以 在没有能量输入的情况下实现磁悬浮.1957 年,美 国理论物理学家巴丁 (Bardeen)、库珀 (Cooper) 和 施里弗 (Schrieffer) 建立了单质金属与合金等超导体的微观理论 (称为 BCS 理论)<sup>[2]</sup>. 此后, 研究者们通常就将 BCS 理论能解释的超导体称为常规超导体. 根据 BCS 理论, *T*<sub>C</sub> 主要取决于电子配对形成库珀对的能量——1968年, 美国物理学家麦克米兰 (McMillan) 提出常压下 *T*<sub>C</sub> 存在上限 40 K, 被称为"麦克米兰极限"<sup>[3]</sup>. 常压下 *T*<sub>C</sub> 大于 40 K 的超导体, 就无法用 BCS 理论解释, 因而被称为高温超导体, 就无法用 BCS 理论解释, 因而被称为高温超导体. 此前, 研究者们发现的高温超导体共有铜基和铁基两大类. 1986年, 瑞士 IBM 实验室的贝德诺兹 (Bednorz) 和缪勒 (Müller) 发现第一类高温超导体——铜氧化物超导体<sup>[4]</sup>, 同年日本东京大学

<sup>\*</sup> 国家重点研发计划 (批准号: 2024YFA1408101, 2022YFA1403101)、国家自然科学基金 (批准号: 92265112, 12374455, 52388201)、 广东省量子科学战略专项 (批准号: GDZX2401004, GDZX2201001)、深圳市资助共建计划 (批准号: SZZX2401001, SZZX2301004) 和深圳市科技计划 (批准号: KQTD20240729102026004) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: chenzhuoyu@sustech.edu.cn

<sup>‡</sup> 通信作者. E-mail: xueqk@sustech.edu.cn

<sup>© 2025</sup> 中国物理学会 Chinese Physical Society



图 1 (a) 铜氧化物超导体、(b) 方平面无限层结构镍氧化物超导体以及 (c) 双层 RP 结构镍氧化物超导体的晶体结构与电子结构示意图

Fig. 1. Schematic diagrams of the crystal structures and electronic structures of (a) cuprate superconductors, (b) square-planar infinite-layer nickelate superconductors, and (c) bilayer RP nickelate superconductors under pressure.

田中昭二团队通过磁化率测量确认了其超导性<sup>[5]</sup>. 1987年,美国休斯顿大学朱经武院士等和中国科 学院物理所赵忠贤院士等将铜氧化物超导体的 *T*<sub>C</sub>提高到 77 K(液氮沸点)以上<sup>[6,7]</sup>. 2006年,日本 东京工业大学细野秀雄团队发现含过渡金属元素 的铁基超导体<sup>[8]</sup>,2008年将*T*<sub>C</sub>提升到 26 K<sup>[9]</sup>.同 年,赵忠贤院士和陈仙辉院士等中国科学家将其 *T*<sub>C</sub>提高到 40 K以上,使铁基超导材料成为第二类 高温超导体系<sup>[10-12]</sup>. 2012年,薛其坤院士团队<sup>[13]</sup> 通过界面增强的方法把单层铁基超导薄膜的*T*<sub>C</sub> 提高到 40 K以上,突破了麦克米兰极限.尽管取 得了这些重要的进展,由于电子之间复杂的相互作 用和高温超导的复杂层状结构等因素,高温超导机 理仍是科学界悬而未决的重大科学问题.

2019年,美国斯坦福大学 Harold Y. Hwang 团队<sup>[14]</sup>发现了与铜氧化物超导体具有同样方平面 结构的新一类无限层镍氧化物超导薄膜,立即引起 了国际上的广泛关注.尽管方平面结构镍氧化物超导材料的电子结构与铜基有相似之处(图1(a),(b)),但 *T*<sub>C</sub>低于铜氧化物超导体.2023年,中国中山大 学王猛团队和清华大学张广铭等<sup>[15]</sup>合作发现了具 有双层 Ruddlesden-Popper(RP)结构的镍氧化物的超导电性——在十几万个大气压的高压环境下,其起始转变的 *T*<sub>C</sub> 超过了液氮沸点 77 K. 这一重 要发现将镍氧化物超导研究推向了新的研究热潮.

随后,国内外科学家迅速取得一系列的进展:浙江 大学袁辉球团队同王猛团队[16]合作实现了零电阻 的测量:中国科学院物理研究所程金光团队与日本 东京大学 Yoshiya Uwatoko 等<sup>[17]</sup> 合作获得了更纯 的双层 RP 相,并通过抗磁性测量观察到了超 90% 体积分数的超导相;复旦大学赵俊团队与上海前瞻 物质科学研究院曾桥石、中国科学院物理研究所 郭建东等<sup>[18]</sup>合作在高压下观察到了三层 RP 结构 镍氧化物零电阻与抗磁性. 特别值得注意的是, RP 结构的镍氧化物超导体与铜氧化物超导体在晶体 结构和电子结构上均存在着显著差异(图1(a), (c)), 但是 T<sub>C</sub> 量级却与铜氧化物相似, 这为揭开高温超 导机理之谜提供了一个非常重要的对比研究体系. 众所周知, 高压导致的晶体和电子结构变化可以显 著提高 T<sub>C</sub>, FeSe 就是一个很好的例子. 一个自然 的问题就是: 镍氧化物能否具有常压下的高温超导 电性?

## 2 发现过程

自 2019 年起,来自全球的多个研究团队,采 用多种不同的技术路径,寻找常压下镍氧化物的高 温超导电性<sup>[19-35]</sup>.中国南方科技大学联合粤港澳 大湾区量子科学中心、清华大学组成攻关团队(后 称南科大团队),于 2022 年起另辟技术路线——



图 2 (a) 大范围扫描透射电子显微镜图像显示 3 UC La<sub>2.85</sub>Pr<sub>0.15</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub>/SrLaAlO<sub>4</sub> 薄膜的纯相晶体结构; (b) 零电阻和 (c) 互感抗 磁性测试证实常压下双层 RP 结构镍氧化物超导电性的存在, 图 (c) 中蓝色和红色的点为实验测试数据, 实线为视觉引导线<sup>[38]</sup> Fig. 2. (a) A large field of view scanning transmission electron microscopy image of 3 UC La<sub>2.85</sub>Pr<sub>0.15</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub>/SrLaAlO<sub>4</sub> film with pure-phase crystalline structure; (b) zero resistance and (c) mutual inductance diamagnetism results confirm the existence of superconductivity of double-layer RP nickel oxide at ambient-pressure. In panel (c), the blue and red dots represent the experimental data, and the solid lines are guides to the eye<sup>[38]</sup>.

自主发展了兼具强氧化能力和原子级沉积精度 的"强氧化原子逐层外延" (gigantic-oxidative atomic-layer-by-layer epitaxy, GOALL-Epitaxy) 技术. 2023年完成设备搭建后,他们实现了强氧 化条件下全系列 RP 结构 (n = 1-5) 及单双层 交替"1212"人工晶格镍氧化物薄膜的可控生长. 2024年6月,南科大团队在申请发明专利的同时, 通过 arXiv 预印本平台公开技术细节 (同年 11 月 在《国家科学评论》在线发表[36]). 利用此技术, 经过1000余次样品迭代,系统性优化薄膜界面应 力匹配、晶体结构及材料化学组分,明确观察到了 常压下纯相双层 RP 结构镍氧化物的超导电性后, 撰写研究论文并于 2024 年 11 月 16 日向《自然》 期刊投稿. 另一方面, 美国斯坦福大学 Harold Y. Hwang 团队 (后称斯坦福团队) 采用主流的脉冲激 光沉积 (pulsed laser deposition, PLD) 技术, 通过

调控衬底外延应变探索双层 RP 结构镍氧化物超 导薄膜的生长,观察到了零电阻,于 2024 年 7 月 30 日向《自然》期刊投稿,并于 2024 年 12 月 19 日 在线发表论文<sup>[37]</sup>.两日后,南科大团队于 2024 年 12 月 21 日在 arXiv 预印本平台公开了尚处于审稿 阶段的研究论文全文,通过零电阻和迈斯纳效应的 双重实验证据,证实了常压下双层 RP 结构镍氧化 物超导电性的存在,经过多轮严格评审及补充实验 后,于 2025 年 2 月 17 日在线发表<sup>[38]</sup> (图 2 显示了 文章的关键数据).

尽管斯坦福团队和南科大团队采用不同的材料组分和薄膜制备技术路径,得到了不同的薄膜晶体结构和超导性能,但二者观测到的超导起始转变温度均突破40K,这表明库珀对在超越麦克米兰极限的高温条件下已经形成,共同印证了常压下镍氧化物的高温超导电性.斯坦福团队在未处理的

SrLaAlO<sub>4</sub> 衬底上利用主流 PLD 方法生长 La<sub>3</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, 然后通过常压低浓度臭氧 (0.4%) 进行异位氧化处 理,获得了超导起始转变温度为 26-42 K 的薄膜. 由于薄膜中存在多种 RP 晶相, 其零电阻温度最 高为2K左右<sup>[37]</sup>. 南科大团队则凭借自主发展的 GOALL-Epitaxy 方法<sup>[36]</sup>, 在原子级平滑的 SrLaAlO<sub>4</sub> 衬底上生长 (La, Pr)<sub>3</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 薄膜时, 原位引入强氧化 处理过程 (10 sccm 的液化提纯臭氧流量和 3.5 cm 的近距离喷淋),不但获得了超导起始转变温度达 到 45 K 的纯相双层 RP 结构薄膜, 而且在 8 K 附 近同时观测到了零电阻和抗磁性——这个结果标 志着具有双层 RP 结构的镍氧化物在常压下也能 达到全局相位相干的超导态[38]. 特别是, 南科大团 队的原位氧化处理避免了非原位退火导致的表面 污染,同时原子级精度的生长方法确保了样品表面 的原子级平滑,这为后续角分辨光电子谱等表面敏 感实验的开展奠定了关键基础.

# 3 技术路径

20世纪60年代发明的分子束外延技术,最初 是用于化合物半导体比如 GaAs 薄膜材料的生长, 现已逐步拓展到包括氧化物超导材料在内的很多 材料. 其核心原理是: 在单晶衬底上生长材料就像 用原子作为"积木",通过精准控制衬底温度、束流 等热力学与动力学参数,让原子/分子在衬底表面 反应,并按照衬底的晶体结构规律地逐层堆叠,外 延形成薄膜. 针对氧化物体系, 主要的外延薄膜生 长技术包括氧化物分子束外延 (oxide molecular beam epitaxy, OMBE) 和脉冲激光沉积 (PLD). OMBE 是在超高真空条件下, 蒸发的金属原子与 活性氧源 (氧气、臭氧、原子氧或氧等离子体) 在衬 底表面反应,从而实现原子级精度的薄膜沉积.然 而, OMBE 的氧化能力和生长速度受限于活性氧 的浓度: 当氧压高于  $10^{-4}$  mbar (1 bar =  $10^{5}$  Pa) 时,金属原子的平均自由程骤降而导致沉积中断. PLD 利用高能量、纳秒级的脉冲激光照射与薄膜 成分相同的原材料靶材,产生瞬态等离子体,轰击 蒸发出来的靶材料在衬底上以晶胞级别的精度反 应沉积而形成薄膜.由于激光激发的等离子体能量 较高, PLD 技术可以耐受更高的腔体气压 (例如大 于 0.1 mbar),因而大部分 PLD 都主要使用氧气作 为氧源. 斯坦福团队采用的就是以氧气为氧源的经 典 PLD 方法. 无论是 OMBE 还是 PLD, 人们都可 以借助反射式高能电子衍射 (RHEED) 对生长过 程进行原位实时监控.

另外一种更为小众的技术在一定程度上结合 了 PLD 和 OMBE 的特点. 早在 1989年, 大阪大 学的研究团队就尝试使用脉冲激光分别烧灼多个 靶材,对不同的化学组分的化合物实现"依次沉 积",并成功获得 Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O 超导薄膜<sup>[39]</sup>. 1991年,该研究团队还实现了铜氧化物薄膜的原 子逐层生长<sup>[40]</sup>. 2017年,美国天普大学郗小星团队 使用这种分靶生长的技术,在LaAlO3 衬底上制备 了La5Ni4O13薄膜<sup>[20]</sup>,他们称此种技术为"原子逐 层激光分子束外延"(atomic-layer-by-layer laser molecular beam epitaxy). 自 2022 年起, 南科大团 队采用这种原子逐层外延技术思路,与多个国产设 备供应商携手合作,对设备进行深度优化,不仅提 高了激光能量、靶材切换等的自动化控制水平,还 将薄膜化学计量精度提升到 0.3%. 特别是, 采用液 化提纯的臭氧作为氧源,利用宽口径冷却气路管道 以降低臭氧传输过程中的分解,以及通过改进腔体 结构使臭氧在样品周围高浓度聚集,使氧化能力相 较于 OMBE 实现了上万倍的巨幅提升<sup>[36]</sup>. 图 3 为 GOALL-Epitaxy 原理示意图, 该技术兼具了 OMBE 的原子逐层沉积精度优势和 PLD 的高氧压、高能 量优势. 尤为重要的是, 高浓度的臭氧环境为薄膜 生长提供了前所未有的超强氧化能力,极大拓宽了 复杂氧化物薄膜生长的热力学与动力学参数空间, 更有利于制备各类热力学亚稳的定制化设计的复 杂结构. 而且, 逐层生长的方式也有利于金属元素 与氧的充分反应使其达到更高的氧化态,这有效抑 制了氧缺陷的产生,从而提高薄膜的结晶质量.此 外, GOALL-Epitaxy 还可以实现原位高浓度臭氧 环境退火,这对提升样品表面质量,满足表面敏感 实验的开展需求有重要意义.

选用不同晶格大小的衬底,可以实现薄膜的外 延应力调控.在高压实验中,十几万大气压的压强 导致超导出现时,双层 RP 结构镍氧化物 La<sub>3</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 晶格产生了约 2% 的压应变.SrLaAlO<sub>4</sub> 衬底对于 La<sub>3</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 而言,正好可以提供约 2% 的面内压应变. 2024 年 5 月,美国布鲁克海文国家实验室 Božović 团队报道了在 SrLaAlO<sub>4</sub> 衬底上用 OMBE 方法生长 La<sub>3</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 的结果.他们使用了多种臭氧处理方式, 虽然没有看到超导的迹象,但证明了在 SrLaAlO<sub>4</sub>



图 3 强氧化原子逐层外延原理示意图<sup>[36]</sup> Fig. 3. Schematic diagram gigantic-oxidative atomic-layer-by-layer epitaxy<sup>[36]</sup>.

衬底上生长双层 RP 结构镍氧化物薄膜的可行性<sup>[25]</sup>. 清华大学王亚愚团队与中山大学王猛、南京大学 卢毅、中国科学院物理研究所陈震等<sup>[41]</sup>合作的 透射电子显微镜分析结果表明,缺氧会严重影响 La<sub>3</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7-δ</sub>单晶的电子结构,而中国科学院物理研 究所程金光团队的高压实验结果指出 Pr 元素替代 利于超导性能的稳定<sup>[17]</sup>.基于这些经验,南科大团 队运用 GOALL-Epitaxy 技术,在 SrLaAlO<sub>4</sub> 衬底 上生长了 3 个晶胞 (约 6 nm) 厚的 La<sub>2.85</sub>Pr<sub>0.15</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 纯相薄膜,在原位强氧化处理后,获得了较为稳定 的超导电性<sup>[38]</sup>.相比于 GOALL-Epitaxy, PLD 技 术的优势在于试验新组分的效率更高——最近,斯 坦福团队利用 PLD 技术,在前述基础上获得了超 导性能更好的 La<sub>2</sub>PrNi<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 薄膜<sup>[42]</sup>.

## 4 超导机理实验研究展望

常压镍基高温超导的突破,为高温超导机理研 究提供了全新实验平台,使得诸多原本受限于高压 条件而难以开展的实验得以在常压下进行.在铜基 超导体的研究中,随氧含量变化的超导相图 (例如 YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>等)是研究机理 的基础.由于双层 RP 结构镍氧化物超导薄膜易于 因缺氧而变为绝缘态,南科大团队通过精确控制逐 步失氧的过程,得到了其随氧含量变化的超导-绝 缘体相变相图,这是研究超导机理的重要出发点. 南科大团队同时利用同步辐射偏振 X 射线吸收谱 (XAS),通过研究超导态与失氧绝缘态的电子轨道 分辨吸收强度差异,发现失氧可能会导致 d<sub>z</sub>2 相关 能带发生显著的变化<sup>[43]</sup>.这与铜氧化物的情况截 然不同:氧含量的变化主要存在于电荷库层,对导 电的铜氧面的影响主要表现为电荷载流子浓度的 变化.因此,获得仅随电荷载流子浓度变化的双层 RP 结构镍氧化物超导相图是一个需要研究的重要 问题.

角分辨光电子能谱 (ARPES) 是超导机理研究 的重要工具,其要求洁净的原子级平滑的样品表 面. 南科大团队采用的原子逐层外延生长方法,在 确保高质量薄膜样品的原子级平滑表面方面有优 势,而原位强氧化处理则使得样品获得超导电性的 同时仍然保持洁净的表面.另外,由于镍基超导薄 膜在室温真空环境下极易失氧而失去超导电性,传 统的超高真空手提箱方案不再适用. 南科大团队改 造了样品传输方案,采用 0.2 MPa 纯氧手提箱传 输样品,在样品转移过程中尽量避免失氧. 这样, 在深圳生长的薄膜运输到上海光源 09U 线站后, 仍能用相对高能的光子测量到费米面和能带结构, 这为研究镍基高温超导机理提供了基础<sup>[44,45]</sup>. 为了 克服高能光子的分辨率较低这一问题,南科大团队



图 4 常压 RP 结构镍氧化物超导薄膜研究路线图

Fig. 4. Research roadmap of ambient-pressure RP phase nickelate superconducting thin films.

还与中国科学技术大学何俊峰课题组合作,进一步 发展了一种全低温冷链的超高真空样品运输方式, 实现了7 eV 激光 ARPES 的测量,并初步得到了超 导薄膜的能隙结构,发现在布里渊区对角线方向具 有"粒子-空穴对称"特征且随温度变化的能隙<sup>[46]</sup>. 下一步计划,是将 ARPES 能隙的测量扩展到整个 布里渊区,并研究其随各参数变化的演化规律.斯 坦福团队也在采用了原位臭氧处理的方法之后,测 量到了双层 RP 结构镍基超导薄膜的能带结构<sup>[47]</sup>.

接下来,针对镍氧化物高温超导机理的研究可 以从以下几类实验着手进行,分别是动量空间测量 (例如 ARPES 和共振非弹性 X 射线散射谱 RIXS)、 实空间测量 (例如透射电子显微镜 STEM 和扫描 隧道显微镜 STM)、相敏实验 (例如约瑟夫森结和 超导量子干涉器件 SQUID) 以及输运调控 (例如 离子调控) 等,如图 4 所示.特别值得关注的是相 敏实验:相敏实验不仅可以给出配对电子个数,还 可以提供超导配对对称性的重要证据.用最新 的 STEM 技术可以还实现局部声子模式能量的测 量<sup>[48]</sup>,该测量有助于理解电子-声子耦合的在超导 配对中的作用.

5 超导材料实验研究展望

提高超导转变温度 T<sub>C</sub>一直是超导领域的核 心研究目标之一. 尽管目前报道的双层 RP 结构镍 氧化物超导薄膜的起始转变温度 T<sub>C</sub>已经突破了 麦克米兰极限,但仍远低于高压下 80 K 的转变温 度<sup>[15]</sup>.最新研究发现, Sm 替代可以实现高达 91 K 的超导转变<sup>[49]</sup>,因而不同稀土元素替代可能是提 高  $T_{\rm C}$  的重要有效手段之一. 另一个是通过更换衬 底实现更大的应力失配. 根据 La<sub>3</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 块体的超 导-压力相图<sup>[50]</sup>, SrLaAlO<sub>4</sub> 衬底所提供压应变尚未 达到最优值. 因此, 寻找合适的单晶衬底或者合适 的缓冲层, 以提供不同于 2% 的压应变, 这也是提 高  $T_{\rm C}$  的策略之一.

在 La<sub>2.85</sub>Pr<sub>0.15</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 超导薄膜中, 衬底中的 Sr 扩散长度为一个晶胞的厚度<sup>[38]</sup>. Sr 取代 La 或 Pr 通常会引入空穴掺杂, 这与 ARPES 的实验数据一 致<sup>[44,45]</sup>. 目前, Sr 的扩散与超导之间的关联尚未有 确切的答案, 界面极性、电荷转移等与超导之间的 关联也不清楚. 因此, 界面调控也是一个非常有效 的手段.

在铜基超导中,铜氧面的电子配对和相位相干 性对其超导电性起着决定性的作用,而不同层数的 铜氧面结构对超导转变温度有着显著的影响<sup>[51]</sup>. 虽然由于层间顶角氧的存在,镍基 RP 结构超导体 的层数调控机理可能与铜基有较大不同,实验上 La<sub>3</sub>Ni<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, La<sub>4</sub>Ni<sub>3</sub>O<sub>10</sub><sup>[18,52,53]</sup> 和 Pr<sub>4</sub>Ni<sub>3</sub>O<sub>10</sub><sup>[54]</sup> 均在高 压下展示了不同程度的超导电性.因此,在常压薄 膜体系中调控镍氧面的层数,包括设计和制备不 同层数混合的人工晶格<sup>[36,55]</sup>,也是调节 *T*<sub>C</sub> 的一个 途径.

# 6 总 结

常压下双层 RP 结构镍氧化物高温超导的 发现,标志着镍基超导研究迈入了一个新的阶段. 我国科研团队利用自主发展的"强氧化原子逐层外 延"技术,制备出了纯相的双层 RP 结构镍氧化物 高温超导薄膜,揭示了界面应力、氧含量调控及稀 土元素替代对超导性能的重要性.未来,通过协同 优化人工晶格设计、界面工程与元素替代,有望进 一步提升超导转变温度.另一方面,结合角分辨光 电子能谱、扫描隧道显微镜、透射电子显微镜等先 进表征手段,研究者们可以对这些材料物性与电子 结构进行深入系统的研究,这为揭示高温超导的微 观机理带来了新的希望.

### 参考文献

- Kamerlingh Onnes H 1991 Through Measurement to Knowledge: The Selected Papers of Heike Kamerlingh Onnes 1853–1926 (Dordrecht: Springer Netherlands) p267
- [2] Bardeen J, Cooper L, Schrieffer J 1957 Phys. Rev. 108 1175
- [3] McMillan W 1968 Phys. Rev. 167 331
- [4] Bednorz J, Müller K 1986 Z. Phys. B Cond. Matter 64 189
- [5] Uchida S, Takagi H, Kitazawa K, Tanaka S 1987 Jpn. J. Appl. Phys. 26 L1
- [6] Zhao Z X, Chen L Q, Yang Q S, Huang Y Z, Chen G H, Tang R M, Liu G R, Cui C G, Chen L, Wang L Z, Guo S Q, Li S L, Bi J Q 1987 *Chin. Sci. Bull.* **32** 412 (in Chinese) [赵忠 贤, 陈立泉,杨乾声, 黄玉珍, 陈赓华, 唐汝明, 刘贵荣, 崔长庚, 陈烈, 王连忠, 郭树权, 李山林, 毕建清 1987 科学通报 **32** 412]
- [7] Wu M K, Ashburn J, Torng C J, Hor P H, Meng R L, Gao L, Huang Z J, Wang Y Q, Chu C W 1987 Phys. Rev. Lett. 58 908
- [8] Kamihara Y, Hiramatsu H, Hirano M, Kawamura R, Yanagi H, Kamiya T, Hosono H 2006 J. Am. Chem. Soc. 128 10012
- [9] Kamihara Y, Watanabe T, Hirano M, Hosono H 2008 J. Am. Chem. Soc. 130 3296
- [10] Chen X H, Wu T, Wu G, Liu R H, Chen H, Fang D F 2008 *Nature* 453 761
- [11] Chen G F, Li Z, Wu D, Li G, Hu W Z, Dong J, Zheng P, Luo J L, Wang N L 2008 Phys. Rev. Lett. 100 247002
- [12] Ren Z A, Lu W, Yang J, Yi W, Shen X L, Zheng C, Che G C, Dong X L, Sun L L, Zhou F, Zhao Z X 2008 Chin. Phys. Lett. 25 2215
- [13] Wang Q Y, Li Z, Zhang W H, Zhang Z C, Zhang J S, Li W, Ding H, Ou Y B, Deng P, Chang K, Wen J, Song C L, He K, Jia J F, Ji S H, Wang Y Y, Wang L L, Chen X, Ma X C, Xue Q K 2012 *Chin. Phys. Lett.* **29** 037402
- [14] Li D F, Lee K, Wang B Y, Osada M, Crossley S, Lee H R, Cui Y, Hikita Y, Hwang H Y 2019 Nature 572 624
- [15] Sun H L, Huo M W, Hu X W, Li J Y, Liu Z J, Han Y F, Tang L Y, Mao Q Z, Yang P T, Wang B S, Cheng J G, Yao D X, Zhang G M, Wang M 2023 Nature 621 493
- [16] Zhang Y N, Su D J, Huang Y N, Shan Z Y, Sun H L, Huo M W, Ye K X, Zhang J W, Yang Z H, Xu Y K, Su Y, Li R, Smidman M, Wang M, Jiao L, Yuan H Q 2024 Nat. Phys. 20 1269
- [17] Wang N N, Wang G, Shen X L, Hou J, Luo J, Ma X P, Yang H X, Shi L F, Dou J, Feng J, Yang J, Shi Y Q, Ren Z A, Ma H M, Yang P T, Liu Z Y, Liu Y, Zhang H, Dong X L, Wang Y X, Jiang K, Hu J P, Nagasaki S, Kitagawa K, Calder S, Yan J Q, Sun J P, Wang B S, Zhou R, Uwatoko Y, Cheng J G 2024 Nature 634 579
- [18] Zhu Y H, Peng D, Zhang E K, Pan B Y, Chen X, Chen L X, Ren H F, Liu F Y, Hao Y Q, Li N N, Xing Z F, Lan F J, Han J Y, Wang J J, Jia D H, Wo H L, Gu Y Q, Gu Y Q, Ji L,

Wang W B, Gou H Y, Shen Y, Ying T Q, Chen X L, Yang W G, Cao H B, Zheng C L, Zeng Q S, Guo J G, Zhao J 2024 *Nature* **631** 531

- [19] Lee J H, Luo G, Tung I C, Chang S H, Luo Z, Malshe M, Gadre M, Bhattacharya A, Nakhmanson S M, Eastman J A, Hong H, Jellinek J, Morgan D, Fong D D, Freeland J W 2014 *Nat. Mater.* **13** 879
- [20] Lei Q Y, Golalikhani M, Davidson B, Liu G Z, Schlom D G, Qiao Q, Zhu Y M, Chandrasena R, Yang W B, Gray A X, Arenholz E, Farrar A K, Tenne D, Hu M H, Guo J D, Singh R, Xi X X 2017 npj Quant. Mater. 2 10
- [21] Zhou X R, Zhang X W, Yi J B, Qin P X, Feng Z X, Jiang P H, Zhong Z C, Yan H, Wang X N, Chen H Y, Wu H J, Zhang X, Meng Z A, Yu X J, Breese M B H, Cao J F, Wang J M, Jiang C B, Liu Z Q 2022 Adv. Mater. 34 2106117
- [22] Pan G A, Song Q, Segedin D, Jung M C, El-Sherif H, Fleck E, Goodge B, Doyle S, Carrizales D, N'Diaye A, Shafer P, Paik H, Kourkoutis L, Baggari I, Botana A, Brooks C, Mundy J 2022 *Phys. Rev. Mater.* 6 055003
- [23] Gao X F, Liu J H, Ji Y Y, Wei L, Xiao W, Hu S L, Li L, Gan Y L, Chen K, Liao Z L 2023 APL Mater. 11 111109
- [24] Wei W Z, Vu D, Zhang Z, Walker F J, Ahn C H 2023 Sci. Adv. 9 eadh3327
- [25] Aggarwal L, Božović I 2024 Materials 17 2546
- [26] Ding X, Fan Y, Wang X X, Li C H, An Z T, Ye J H, Tang S L, Lei M Y N, Sun X T, Guo N, Chen Z H, Sangphet S, Wang Y L, Xu H C, Peng R, Feng D L 2024 Nat. Sci. Rev. 11 nwae194
- [27] Cui T, Choi S, Lin T, Liu C, Wang G, Wang N N, Chen S R, Hong H T, Rong D K, Wang Q Y, Jin Q, Wang J O, Gu L, Ge C, Wang C, Cheng J G, Zhang Q H, Si L, Jin K J, Guo E J 2024 Commun. Mater. 5 32
- [28] Liu Y C, Ou M J, Chu H F, Yang H, Li Q, Zhang Y J, Wen H H 2024 Phys. Rev. Mater. 8 124801
- [29] Ren X L, Sutarto R, Wu X X, Zhang J F, Huang H, Xiang T, Hu J P, Comin R, Zhou X J, Zhu Z H 2025 Commun. Phys. 8 52
- [30] Chow S L E, Luo Z Y, Ariando A 2025 Nature DOI: 10.1038/s41586-025-08893-4
- [31] Liu Y C, Ou M J, Wang Y, Wen H H 2024 arXiv. 2411.16047 [cond-mat. supr-con]
- [32] Huo M W, Ma P Y, Huang C X, Huang X, Sun H L, Wang M 2025 arXiv: 2501.15929 [cond-mat. supr-con]
- [33] Zhong H Y, Hao B, Wei Y, Zhang Z J, Liu R X, Huang X R, Ni X S, Cantarino M, Cao K, Nie Y F, Schmitt T, Lu X Y 2025 arXiv: 2502.03178 [cond-mat. supr-con]
- [34] Xu M Y, Qiu D, Xu M H, Guo Y H, Shen C, Yang C, Sun W J, Nie Y F, Li Z X, Xiang T, Qiao L, Xiong J, Li Y R 2025 arXiv: 2502.14633 [cond-mat. supr-con]
- [35] Yang M W, Wang H, Tang J Y, Luo J P, Wu X F, Mao R L, Xu W J, Zhou G D, Dong Z G, Feng B H, Shi L C, Pei Z C, Gao P, Chen Z Y, Li D F 2025 arXiv: 2503.18346 [cond-mat. supr-con]
- [36] Zhou G D, Huang H L, Wang F Z, Wang H, Yang Q S, Nie Z H, Lv W, Ding C, Li Y Y, Lin J Y, Yue C M, Li D F, Sun Y J, Lin J H, Zhang G M, Xue Q K, Chen Z Y 2025 *Nat. Sci. Rev.* 12 nwae429
- [37] Ko E K, Yu Y J, Liu Y D, Bhatt L, Li J R, Thampy V, Kuo C T, Wang B Y, Lee Y, Lee K, Lee J, Goodge B H, Muller D A, Hwang H Y 2025 *Nature* 638 935
- [38] Zhou G D, Lv W, Wang H, Nie Z H, Chen Y Q, Li Y Y, Huang H L, Chen W Q, Sun Y J, Xue Q K, Chen Z Y 2025 *Nature* 640 641
- [39] Kanai M, Kawai T, Kawai S, Tabata H 1989 Appl. Phys. Lett. 54 1802

- [40] Kanai M, Kawai T, Kawai S 1991 Appl. Phys. Lett. 58 771
- [41] Dong Z H, Huo M W, Li J, Li J Y, Li P C, Sun H L, Gu L, Lu Y, Wang M, Wang Y Y, Chen Z 2024 *Nature* 630 847
- [42] Liu Y D, Ko E K, Tarn Y J, Bhatt L, Goodge B H, Muller D A, Raghu S, Yu Y J, Hwang H Y 2025 arXiv: 2501.08022 [cond-mat. supr-con]
- [43] Wang H, Huang H L, Zhou G D, Lv W, Yue C M, Xu L Z, Wu X F, Nie Z H, Chen Y Q, Sun Y J, Chen W Q, Yuan H T, Chen Z Y, Xue Q K 2025 arXiv: 2502.18068 [cond-mat. supr-con]
- [44] Li P, Zhou G D, Lv W, Li Y Y, Yue C M, Huang H L, Xu L Z, Shen J C, Miao Y B, Song W H, Nie Z H, Chen Y Q, Wang H, Chen W Q, Huang Y B, Chen Z H, Qian T, Lin J H, He J F, Sun Y J, Chen Z H, Xue Q K 2025 arXiv. 2501.09255 [cond-mat. supr-con]
- [45] Yue C M, Miao J J, Huang H L, Hua Y C, Li P, Li Y Y, Zhou G D, Lv W, Yang Q S, Sun H Y, Sun Y J, Lin J H, Xue Q K, Chen Z Y, Chen W 2025 arXiv: 2501.06875 [condmat. str-el]
- [46] Shen J C, Miao Y, Ou Z P, Zhou G D, Chen Y Q, Luan R Q, Sun H X, Feng Z K, Yong X R, Li P, Li Y Y, Xu L Z, Lv W, Nie Z H, Wang H, Huang H L, Sun Y J, Xue Q K, Chen Z Y, He J F 2025 arXiv. 2502.17831 [cond-mat. supr-con]
- [47] Wang B Y, Zhong Y, Abadi S, Liu Y D, Yu Y J, Zhang X L, Wu Y M,Wang R H, Li J R, Tarn Y J, Ko E K, Thampy V, Hashimoto M, Lu D H, Lee Y S, Devereaux T P, Jia C J, Hwang H Y, Shen Z X 2025 arXiv: 2504.16372 [cond-mat. supr-con]
- [48] Yang H B, Zhou Y N, Miao G Y, Rusz J, Yan X X, Guzman F, Xu X F, Xu X H, Aoki T, Zeiger P, Zhu X T, Wang W H,

Guo J D, Wu R Q, Pan X Q 2024 Nature 635 332

- [49] Li F Y, Peng D, Dou J, Guo N, Ma L, Liu C, Zhang Y L, Wang L Z, Luo J, Yang J, Zhang J, Chang T Y, Chen Y S, Cai W Z, Cheng J G, Wang Y Z, Zheng Q, Zhou R, Zeng Q S, Tao X T, Zhang J J 2025 arXiv: 2501.14584 [cond-mat. supr-con]
- [50] Li J Y, Peng D, Ma P Y, Zhang H Y, Xing Z F, Huang X, Huang C X, Huo M W, Hu D Y, Dong Z X, Chen X, Xie T, Dong H L, Sun H L, Zeng Q S, Mao H K, Wang M 2024 arXiv: 2404.11369 [cond-mat. supr-con]
- [51] Wang Z C, Zou C T, Lin C T, Luo X Y, Yan H T, Yin C H, Xu Y, Zhou X J, Wang Y Y, Zhu J 2023 *Science* 381 227
- [52] Zhang M X, Pei C Y, Peng D, Du X, Hu W X, Cao Y T, Wang Q, Wu J F, Li Y D, Liu H Y, Wen C H P, Song J, Zhao Y, Li C H, Cao W Z, Zhu S H, Zhang Q, Yu N, Cheng P H, Zhang L L, Li Z W, Zhao J K, Chen Y L, Guo H J, Wu C J, Yang F, Zeng Q S, Yan S C, Yang L X, Qi Y P 2025 *Phys. Rev. X* 15 021005
- [53] Shi M Z, Li Y K, Wang Y X, Peng D, Yang S H, Li H P, Fan K B, Jiang K, He J F, Zeng Q S, Song D S, Ge B H, Xiang Z J, Wang Z Y, Ying J J, Wu T, Chen X H 2025 arXiv: 2501.12647 [cond-mat. supr-con]
- [54] Zhang E K, Peng D, Zhu Y H, Chen L X, Cui B K, Wang X Y, Wang W B, Zeng Q S, Zhao J 2025 Phys. Rev. X 15 021008
- [55] Shi M Z, Peng D, Fan K B, Xing Z F, Yang S H, Wang Y Z, Li H P, Wu R Q, Du M, Ge B H, Zeng Z D, Zeng Q S, Ying J J, Wu T, Chen X H 2025 arXiv: 2502.01018 [cond-mat. supr-con]

# VIEWS AND PERSPECTIVES

# Ambient-pressure Ruddlesden-Popper bilayer nickelate superconductors: From discovery to prospects<sup>\*</sup>

CHEN Zhuoyu<sup>1)2)†</sup> HUANG Haoliang<sup>1)2)</sup> XUE Qikun<sup>1)2)3)‡</sup>

1) (State Key Laboratory of Quantum Functional Materials and Department of Physics,

Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China)

2) (Quantum Science Center of Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area, Shenzhen 518045, China)

3) (Department of Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

(Received 13 March 2025; revised manuscript received 20 April 2025)

#### Abstract

In recent years, significant progress has been made in the superconductivity of nickelates, with global teams discovering various nickelate superconductors under ambient and high pressure conditions. Research teams in

<sup>\*</sup> Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant Nos. 2024YFA1408101, 2022YFA1403101), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 92265112, 12374455, 52388201), the Quantum Science Strategic Initiative of Guangdong Province, China (Grant Nos. GDZX2401004, GDZX2201001), the Municipal Funding Co-Construction Program of Shenzhen, China (Grant Nos. SZZX2401001, SZZX2301004), and the Science and Technology Program of Shenzhen, China (Grant No. KQTD20240729102026004).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: chenzhuoyu@sustech.edu.cn

<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: xueqk@sustech.edu.cn

China and USA have independently discovered ambient-pressure superconductivity in Ruddlesden-Popper bilayer nickelate thin films through different technical pathways, establishing a novel platform for probing hightemperature superconducting mechanisms. The Chinese teams have synthesized pure-phase bilayer nickelate films with atomically smooth surfaces by using their proprietary Gigantic-Oxidative Atomic-Layer-by-Layer Epitaxy (GOALL-Epitaxy) technique. After *in situ* strong oxidation processing of surface, surface-sensitive measurements, such as ARPES, can be conducted on these atomically flat films to reveal the electronic structure of the superconducting phase, and further in-depth experimental research on superconducting mechanisms is expected. Through synergistic efforts in lattice engineering, rare-earth/alkaline-earth element substitution, and interface strain engineering, this system has the potential to achieve higher superconducting transition temperatures.



Keywords: high-temperature superconductivity, nickelate thin film, gigantic-oxidative atomic-layer-by-layer epitaxy

**PACS:** 74.25.-q, 74.70.-b, 74.78.-w, 81.15.-z

DOI: 10.7498/aps.74.20250331

**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250331





Institute of Physics, CAS

# 常压下双层结构镍氧化物薄膜高温超导电性的发现与研究展望 陈卓昱 黄浩亮 薛其坤

# Ambient-pressure Ruddlesden-Popper bilayer nickelate superconductors: From discovery to prospects CHEN Zhuoyu HUANG Haoliang XUE Qikun

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 74, 097401 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250331 CSTR: 32037.14.aps.74.20250331 在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.74.20250331 当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn

### 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

铜氧化物超导体电荷序的共振X射线散射研究进展

Research progress of resonant X-ray scattering of charge order in cuprate superconductors 物理学报. 2025, 74(8): 087402 https://doi.org/10.7498/aps.74.20241402

高温超导: 推动量子多体理论革命的引擎

High-temperature superconductivity: A driving force for the revolution in quantum many-body theory 物理学报. 2025, 74(7): 077403 https://doi.org/10.7498/aps.74.20250313

### 高温超导体电子结构和超导机理的角分辨光电子能谱研究

Angle-resolved photoemission spectroscopy studies on the electronic structure and superconductivity mechanism for high temperature superconductors

物理学报. 2021, 70(1): 017406 https://doi.org/10.7498/aps.70.20201913

铁砷化物超导体的自旋激发谱

Spin excitation spectra of iron pnictide superconductors 物理学报. 2025, 74(1): 017401 https://doi.org/10.7498/aps.74.20241534

### 镍基超导体中电荷序的实验研究进展

Experimental research progress of charge order of nickelate based superconductors 物理学报. 2024, 73(19): 197104 https://doi.org/10.7498/aps.73.20240898

氧化物异质界面上的准二维超导

Quasi-two-dimensional superconductivity at oxide heterostructures 物理学报. 2023, 72(9): 097401 https://doi.org/10.7498/aps.72.20230044