

## НЕЛИНЕЙНЫЕ СВЧ-СВОЙСТВА БЛОЧНЫХ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНОК $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ ВБЛИЗИ ТЕМПЕРАТУРЫ СВЕРХПРОВОДЯЩЕГО ПЕРЕХОДА

*С. В. Барышев<sup>a\*</sup>, А. В. Бобыль<sup>a</sup>, В. В. Курин<sup>b</sup>,  
Ю. Н. Ноздрин<sup>b</sup>, Е. Е. Пестов<sup>b</sup>, Р. А. Сурис<sup>a</sup>*

<sup>a</sup> *Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук  
194021, Санкт-Петербург, Россия*

<sup>b</sup> *Институт физики микроструктур Российской академии наук  
603950, ГСП-105, Нижний Новгород, Россия*

Проведены исследования структуры и локального нелинейного СВЧ-отклика блочных пленок  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ , а также микромостиков этих пленок методом низкотемпературной сканирующей микроскопии. Обнаружена корреляция полуширины температурной зависимости мощности третьей гармоники  $W_{TH}$  и кривой напряжения, индуцируемого электронным зондом  $W_{EBIV}$ , для среднего размера блока. Предложена теоретическая модель, демонстрирующая, что при больших размерах блоков нелинейный СВЧ-отклик определяется внутриблочным пиннингом абрикосовских вихрей, а при уменьшении их размера в отклике появляется дополнительный вклад, связанный с пиннингом гипервихрей на джозефсоновской сетке межблочных границ.

PACS: 74.25.Nf, 74.25.Qt, 74.78.Vz

Несмотря на успешное применение пленок высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) в радиофизике [1], при высоких уровнях мощности СВЧ-сигнала нелинейность высокочастотного отклика ВТСП-пленок приводит к интермодуляционным искажениям сигнала [2], генерации высших гармоник основной частоты [3] и росту СВЧ-потерь [4], что ограничивает применение сверхпроводниковых СВЧ-устройств. Известно, что нелинейные СВЧ-свойства ВТСП-пленок могут быть обусловлены как собственными свойствами сверхпроводника [2, 5, 6], так и реальной микроструктурой образца [4, 7–9]. Однако при температурах, близких к критической температуре  $T_c$ , все величины критических токов, характеризующих различные механизмы нелинейности, стремятся к нулю и многие из них могут давать свой вклад в полный нелинейный отклик. Поэтому вопрос о природе нелинейного ВТСП-отклика в окрестности  $T_c$  до сих пор остается открытым.

В настоящей работе проведены исследования влияния микроструктуры пленок  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  на их нелинейные СВЧ-свойства и электрофизические параметры. Установлена корреляция между средним размером блоков, из которых состоят пленки, и полуширинами максимумов температурных зависимостей мощности третьей гармоники и напряжения, индуцированного электронным пучком ( $EBIV$ -сигнал). В рамках модели эффективной среды показано, что при больших размерах блоков нелинейный СВЧ-отклик определяется внутриблочным пиннингом абрикосовских вихрей, а при уменьшении их размеров в отклике появляется дополнительный вклад, связанный с пиннингом гипервихрей на джозефсоновской сетке межблочных границ.

В работе экспериментально исследовалась серия эпитаксиальных  $c$ -ориентированных пленок  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  толщиной  $d = 0.7–0.9$  мкм, выращенных на подложках  $LaAlO_3$  путем магнетронного распыления мишеней составов (1 : 2 : 3) и (2 : 3 : 5) в смеси газов  $Ar/O$  при давлении 40 Па и температуре подложки  $750^\circ C$ . Температура перехода

\*E-mail: lolapalooza@mail.ru

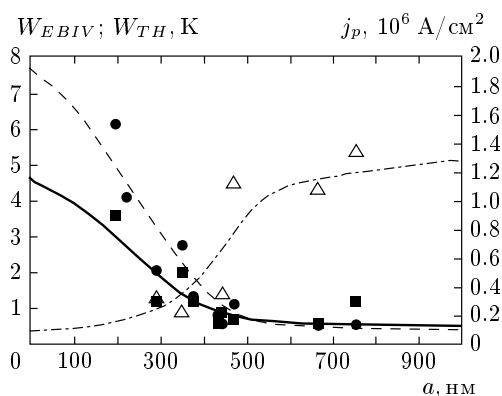


Рис. 1. Зависимости полуширины пика сигнала третьей гармоники  $W_{TH}$  (кружки),  $EBIV$ -сигнала  $W_{EBIV}$  (квадраты) и тока пиннинга  $j_p$  (треугольники) от среднего размера кристаллита  $a$  для эпитаксиальных пленок  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ . Линиями показаны зависимости  $W(a)$  и  $j_p(a)$ , рассчитанные с помощью модели эффективной среды для нелинейного отклика  $W_{TH}$  (штриховая кривая), сигнала  $EBIV$  (сплошная кривая) и тока пиннинга (штрихпунктирная кривая)

пленок в сверхпроводящее состояние варьировалась в пределах 80–92 К, ширина перехода — от 0.15 до 3.6 К. Пленки  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  имели плотность критического тока пиннинга  $j_p(77\text{ К}) \approx 10^5\text{--}10^6\text{ А/см}^2$ .

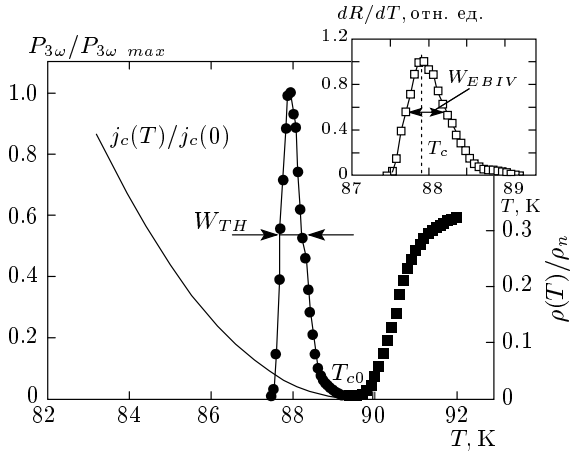
Как показали исследования, выполненные с помощью электронной просвечивающей микроскопии, пленки  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  имеют блочную структуру, т. е. эти пленки состоят из блоков с малоугловыми границами (межблочным пространством). Для определения размеров блоков регистрировались дифракционные кривые качания дифрактометром фирмы RIGAKU ( $D_{max} - B/RC$ ) с использованием специальной схемы коллимации, уменьшающей расходимость первичного пучка рентгеновского излучения ( $\lambda_{Cu} = 1.54183\text{ \AA}$ ) в режиме  $\theta-2\theta$ -сканирования. После обработки данных рентгеноструктурного анализа по соответствующим формулам в приближении блочно-мозаичной модели были получены размеры области когерентного рассеяния (ОКР) для каждого из образцов, значения которых оказались в пределах от 0.2 до 0.8 мкм. Под средним размером одиночного блока  $a$  далее подразумевается средний размер ОКР.

Для поиска корреляции между структурными и электрофизическими параметрами были использованы две независимые зондовые методики. Метод ближнепольной нелинейной СВЧ-микроскопии основан на регистрации нелинейного СВЧ-отклика зон-

дом индуктивного типа — металлической проволокой длиной 1 мм и диаметром 50 мкм, соединяющей внешний и внутренний проводники коаксиального кабеля [10, 11]. Уровень падающей мощности на частоте первой гармоники ( $\nu = 472\text{ МГц}$ ) был равен 100 мВт. С помощью данной методики при температурах, близких к  $T_c$ , измерялись полуширины  $W_{TH}$  температурной зависимости третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$  и строилась зависимость полуширины от среднего размера блока,  $W_{TH}(a)$  (рис. 1, кружки). Вторая методика низкотемпературной сканирующей микроскопии [12–14] позволяет определять как температурную зависимость локального сопротивления  $\rho_i(T)$  при помощи функции  $f(T_{ci})$  —  $EBIV$ -сигнала одиночного фрагмента пленки, так и строить функцию  $F(T_{ci})$  распределения фрагментов по критической температуре. Размер фрагмента составляет примерно 4 мкм и определяется размером зонда и зоной теплового разогрева. Поскольку температурная зависимость интегрального сопротивления сверхпроводящих полосок может отличаться от поведения сопротивления локальных фрагментов, в случае низкотемпературной сканирующей микроскопии для получения параметра  $W_{EBIV}$  (рис. 1, квадраты) использовалась специальная процедура свертки [15]. Подобное совмещение таких методик (рис. 2) дает информацию о свойствах сверхпроводника в очень широком температурном диапазоне, поскольку области регистрации сигналов используемых зондовых методик лежат в различных температурных диапазонах. При этом нелинейный СВЧ-отклик пленок  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  появляется в области температур  $T_{c0}$ , когда величина удельного сопротивления  $\rho(T)$  образца обращается в нуль [10].

Рассмотрим феноменологическую модель двухфазного сверхпроводника, состоящего из цилиндрических сверхпроводящих гранул, помещенных во вторую среду, которую будем называть матрицей. При этом считаем, что первая фаза описывает сверхпроводящие свойства блока, а вторая — наличие межблочного пространства в сверхпроводящей пленке. В частности, такой подход позволяет моделировать также среду сверхпроводящих гранул, соединенных между собой джозефсоновскими связями [9].

Найдем вольт-амперную характеристику двухфазной среды  $\langle E \rangle(\langle j \rangle)$ , содержащей в себе фазу цилиндрических включений с радиусом  $a$  и объемной концентрацией  $p = V_1/V$  (где  $V_1$  — общий объем всех гранул, а  $V$  — объем сверхпроводника), используя приближение эффективной среды [14, 16], которое справедливо при любых объемных концентраци-



**Рис. 2.** Температурные зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$ , нормированной на свое максимальное значение  $P_{3\omega max}$ , сопротивления мостика  $\rho(T)$ , нормированного на сопротивление нормальной фазы ( $T = 300$  К), и эффективного критического тока  $j_c(T)$ , нормированного на значение критического тока при  $T = 0$ , для пленки  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ . На вставке показана температурная зависимость  $EBIV$ -сигнала (для другой пленки), нормированная на свое максимальное значение. На рисунке также указана температура  $T_{c0}$  перехода в СП-состояние и критическая температура  $T_c$  перехода в СП-состояние в  $EBIV$ -методике. Отмечены основные параметры, используемые в работе: полуширины температурных зависимостей сигнала третьей гармоники  $W_{TH}$  и  $EBIV$ -сигнала  $W_{EBIV}$

ях фазы включений  $p$ :

$$p \frac{\langle \rho \rangle - \rho_1(j_1, T)}{\langle \rho \rangle + \rho_1(j_1, T)} + (1 - p) \frac{\langle \rho \rangle - \rho_2(j_2, T)}{\langle \rho \rangle + \rho_2(j_2, T)} = 0, \quad (1)$$

где  $\langle \rho \rangle = \langle E \rangle / \langle j \rangle$  удельное сопротивление эффективной среды, а  $\rho_1 = E_1(j_1, T) / j_1$ ,  $\rho_2 = E_2(j_2, T) / j_2$  — удельные сопротивления первой и второй сред. В качестве модельной зависимости возьмем вольт-амперную характеристику безгистерезисного джозефсоновского контакта [17]:

$$E_{1,2}(j_{1,2}, T) = \rho_{n1,2} \text{sign}(j_{1,2}) \sqrt{j_{1,2}^2 - j_{c1,2}^2(T)} \frac{j_{1,2}}{j_{1,2}}, \quad (2)$$

где  $j_{c1}(T)$ ,  $j_{c2}(T)$  — критические плотности токов,  $\rho_{n1}$ ,  $\rho_{n2}$  — удельные сопротивления соответствующих фаз. Будем полагать, что величины эффективной плотности тока  $\langle j \rangle$  и эффективной напряженности электрического поля  $\langle E \rangle$  в сверхпроводнике, соответственно, равны

$$\langle j \rangle = pj_1 + (1 - p)j_2, \quad (3)$$

$$\langle E \rangle = pE_1(j_1, T) + (1 - p)E_2(j_2, T), \quad (4)$$

где  $j_1$ ,  $E_1$  и  $j_2$ ,  $E_2$  — величины плотности токов и электрических полей в блоках и матрице, соответственно. Решив численно систему уравнений (1)–(4) и считая, что зависимость объемной концентрации  $p$  от размера блока  $a$  задается как

$$p(a) = \left( \frac{a}{a + d} \right)^2$$

(где  $d$  — некоторая константа), определяем  $\langle E \rangle$  в сверхпроводнике и вольт-амперную характеристику композитной среды  $\langle E \rangle(\langle j \rangle)$ . Результаты численного расчета ширины пика нелинейного отклика  $W_{TH}$  (штриховая кривая) и ширины  $EBIV$ -сигнала  $W_{EBIV}$  (сплошная кривая) от среднего размера блока  $a$  показаны на рис. 1. Видно, что при увеличении размера блока  $a$ , а следовательно, и объема включений ( $p \sim a^2$ ) полуширины  $W_{TH}$  и  $W_{EBIV}$ , т. е. ширина сверхпроводящего перехода  $\rho(T)$ , уменьшаются. Результаты расчетов показали, что это возможно в том случае, когда среда состоит из монокристаллов (блоков), помещенных в сверхпроводящую матрицу с подавленным критическим током:  $j_{c1}(T) > j_{c2}(T)$ . В этом случае при возрастании объема монокристаллической (блочной) фазы в сверхпроводнике ток начинает концентрироваться в блоках, что приводит к возрастанию эффективной плотности тока сверхпроводника  $\langle j_c \rangle$ .

Отметим, что уширение температурной зависимости мощности третьей гармоники и  $EBIV$ -сигнала связывается нами в основном с перераспределением тока между двумя фазами. Однако существует еще один механизм уширения, влияющий на ход сопротивления и генерацию третьей гармоники — в блоках существует разброс по критической температуре перехода в сверхпроводящее состояние. В этом случае существование нескольких фаз с различными температурами перехода приводит к уширению температурной зависимости  $\langle \rho \rangle(T)$  и даже к появлению на ней дополнительных ступеней и, соответственно, дополнительных пиков на кривой  $EBIV$ -сигнала или на температурной зависимости нелинейного отклика. В наших экспериментах на зависимостях нелинейного отклика и кривых  $EBIV$ -сигнала от температуры наблюдался только один максимум. Кроме того, рентгеноструктурные исследования показали, что соединение  $\text{YBCO}$ , содержащееся в блоках, имеет структуру 1–2–3, а сверхпроводящих фаз  $\text{YBCO}$  с другим катионным

составом (например, фазы YBCO со структурами 1–2–4 или 2–4–7) или с существенно различным содержанием кислорода [18] не было обнаружено. В этом случае разброс по критической температуре в блоках и матрице может быть обусловлен существованием микродеформаций напряжения  $\delta\varepsilon$  (разброс значений параметра  $c$ ) и приводить к некоторому уширению температурных зависимостей сигналов. Этот механизм должен влиять на подавление или увеличение критического тока в блоках, т. е. задавать дисперсию

$$j_c(T) = j_c^0(1 - t_i)^{\alpha, \beta}$$

и приводить к отклонению положения экспериментальных точек от теоретических зависимостей. Однако экспериментальные исследования *EBIV*-сигнала показали, что разброс критических температур в образцах составил 0.2 К при больших размерах блоков и 0.5 К для малых размеров блоков, что меньше величин уширения сигналов, обнаруженных нами в эксперименте. Поэтому мы считаем, что основным механизмом уширения температурных зависимостей мощности третьей гармоники и *EBIV*-сигнала является перераспределение тока в двухфазной системе.

Для экспериментальной проверки предложенной выше модели двухфазного сверхпроводника был дополнительно измерен критический ток  $j_p$ , обусловленный пиннингом вихрей в образце, при различных размерах блоков  $a$  (рис. 1, треугольники). Величина  $j_p$  определялась в рамках модели Бина по остаточной намагниченности пленки, измеренной бесконтактным методом [11] с помощью датчика Холла. Эти эксперименты показали хорошее качественное и количественное согласие с моделью двухфазного сверхпроводника. А именно, при увеличении  $a$  наблюдалось уменьшение ширины температурных зависимостей сигналов  $W_{TH}$  и  $W_{EBIV}$  за счет возрастания величины плотности критического тока пиннинга  $j_p$ . При этом значения критических токов пиннинга при больших ( $j_{p1}(77\text{ К}) = 10^6\text{ А/см}^2$ ) и малых ( $j_{p2}(77\text{ К}) = 10^5\text{ А/см}^2$ ) значениях размеров гранул хорошо согласуются с величинами критических токов двух сред,  $j_{c1}(77\text{ К}) = 3 \cdot 10^6\text{ А/см}^2$  и  $j_{c2}(77\text{ К}) = 10^5\text{ А/см}^2$ , полученных из модели двухфазного сверхпроводника. Таким образом, исходя из феноменологической модели сверхпроводника можно сделать вывод о том, что при больших размерах блоков нелинейный СВЧ-отклик определяется внутриблочным пиннингом абрикосовских вихрей, а при уменьшении их размеров в отклике появляется дополнительный вклад, связанный с пиннингом ги-

первихрей на джозефсоновской сетке межблочных границ.

Для ответа на вопрос о характере проникновения магнитного поля в эпитаксиальную пленку  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  можно воспользоваться фазовой диаграммой смешанного состояния блочных сверхпроводников [19]. Отметим, что в нашем случае вихри в образце могут рождаться только СВЧ-зондом. При этом, если  $a \approx 800\text{ нм}$ , то высокочастотное магнитное поле проникает в объем блоков в виде абрикосовских вихрей, поскольку магнитное поле, создаваемое СВЧ-зондом вблизи поверхности пленки, составляет величину порядка  $H_{rf} = 14\text{ Э}$  и превышает первое критическое поле кристаллитов (блоков)  $H_{c1}(91\text{ К}) = 10\text{ Э}$ . В другом предельном случае, когда  $a$  порядка лондоновской глубины проникновения  $\lambda_L(77\text{ К}) \approx 200\text{ нм}$ ,  $H_{rf}$  проникает в джозефсоновские связи в виде гипервихрей, так как  $H_{rf} < H_{c1}(77\text{ К}) = 150\text{ Э}$ . В то же время, поскольку для характерных параметров пленок ( $\lambda_J(77\text{ К}) = 0.4\text{ мкм}$ ,  $j_c(77\text{ К}) = 5 \cdot 10^5\text{ А/см}^2$ )  $H_{rf}$  меньше первого критического поля джозефсоновского перехода  $H_{c1}^J(77\text{ К}) = 25\text{ Э}$  [20], в этом случае джозефсоновские вихри в пленке  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  не возникают.

Также следует отметить, что из зависимостей на рис. 1 следует, что увеличение размера блока в 3 раза приводит к сужению полуширин температурной зависимости сигнала третьей гармоники  $W_{TH}$ , кривых *EBIV*  $W_{EBIV}$  и росту критического тока сверхпроводника  $j_c$  приблизительно в 10 раз, уменьшая тем самым СВЧ-потери и коэффициент нелинейности

$$\alpha(T) \sim \frac{1}{j_c(T)^2}$$

[4, 11], соответственно, в 10 и 100 раз. Это приводит к снижению нелинейных эффектов в пленках  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  и увеличивает температурный диапазон применения ВТСП-структур.

Таким образом, в настоящей работе исследовано влияние среднего размера блока на нелинейные СВЧ-свойства и электрофизические параметры эпитаксиальных пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ . Экспериментально обнаружена корреляция полуширины температурной зависимости мощности третьей гармоники и кривых *EBIV* со средним размером блока. На основе феноменологической модели двухфазного сверхпроводника разделены вклады в нелинейном СВЧ-отклике, обусловленные внутриблочным и межблочным пиннингом вихрей, при температурах, близких к  $T_c$ .

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 06-02-16592), МНТЦ 2920.

## ЛИТЕРАТУРА

1. C. Collado, J. Mateu et al., IEEE Trans. Appl. Supercond. **15**, 992 (2005).
2. T. Dahm and D. J. Scalapino, Phys. Rev. B **60**, 13125 (1999).
3. C. Wiker, Z.-Y. Shen et al., IEEE Trans. Appl. Supercond. **5**, 1665 (1995).
4. H. Xin, D. E. Oates et al., Phys. Rev. B **65**, 214533 (2002).
5. Л. П. Горьков, Г. М. Элиашберг, ЖЭТФ **54**, 612 (1968).
6. D. Agassi and D. E. Oates, Phys. Rev. B **72**, 014538 (2005); В. В. Курин, А. А. Уткин, ЖЭТФ **127**, 652 (2005).
7. C. J. van der Beek, M. Konczykowski et al., Phys. Rev. Lett. **74**, 1214 (1995).
8. G. Hampel, B. Batlogg et al., Appl. Phys. Lett. **71**, 3904 (1997).
9. J. Halbritter, J. Supercond. **8**, 691 (1995).
10. E. E. Pestov, V. V. Kurin, and Yu. N. Nozdrin, IEEE Trans. Appl. Supercond. **11**, 131 (2001).
11. А. А. Андронов, Е. Е. Пестов и др., Изв. Вузов. Радиофизика **46** (2), 123 (2003).
12. J. R. Clem and R. P. Huebener, J. Appl. Phys. **51**, 2764 (1980).
13. M. E. Gaevski, A. V. Bobyl, S. G. Konnikov et al., Scanning Microsc. **10**, 679 (1996).
14. D. V. Shantsev, M. E. Gaevski, A. V. Bobyl et al., Phys. Rev. B **60**, 17 (1999).
15. Ю. Н. Ноздрин, Е. Е. Пестов, В. В. Курин, С. В. Барышев и др., ФТТ **12** (2006).
16. X. C. Zeng, D. J. Bergman, P. M. Hui, and D. Stroud, Phys. Rev. B **38**, 10970 (1988).
17. К. К. Лихарев, *Введение в динамику джозефсоновских переходов*, Наука, Москва (1985).
18. Н. М. Плакида, *Высокотемпературные сверхпроводники*, Международная программа образования, Москва (1996).
19. E. V. Sonin and A. K. Nagantsev, Phys. Lett. A **140**, 127 (1989).
20. В. В. Шмидт, *Введение в физику сверхпроводников*, МЦНМО, Москва (1985).