02,01

Влияние микроструктуры ультратонких пленок YBaCuO на нелинейный СВЧ отклик

© Е.Е. Пестов [1,2], П.А. Юнин [1,2], Д.В. Мастеров [1], А.Е. Парафин [1], С.А. Павлов [1], Е.А. Архипова [1], Д.А. Савинов [1,2]

[1] Институт физики микроструктур РАН, ГСП-105,
Нижний Новгород, Россия
[2] Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
Нижний Новгород, Россия

E-mail: pestov@ipmras.ru

Поступила в Редакцию 6 марта 2025 г.
В окончательной редакции 6 марта 2025 г.
Принята к публикации 5 мая 2025 г.

Проведены локальные измерения нелинейного СВЧ отклика с помощью ближнепольной СВЧ методики для ультратонкой пленки YBaCuO с неоднородным распределением толщины 1−6 nm. С помощью рентгеноструктурного анализа изучена ее микроструктура. Полученные экспериментальные результаты указывают на то, что нелинейный отклик в области низких температур может быть связан с наличием андреевских краевых состояний в суперкристалличной фазе пленки YBaCuO.

Ключевые слова: высокотемпературные сверхпроводники, ближнепольная СВЧ микроскопия, микроструктура, андреевские краевые состояния, ультратонкие пленки.

DOI: 10.61011/FTT.2025.07.61179.12HH-25

1. Введение

В последние годы вопросу о влиянии микроструктуры пленок высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) на их СВЧ свойства посвящено значительное количество работ как прикладного, так и фундаментального характера [1]. Этот интерес обусловлен прежде всего тем, что в большинстве экспериментальных ситуаций наблюдаемые нелинейные СВЧ свойства пленок ВТСП определяются как внешними источниками нелинейности, так и фундаментальными свойствами самих ВТСП.

Одним из фундаментальных механизмов нелинейности является нелинейный эффект Мейснера (НЭМ) [2,3]. НЭМ чувствителен к внутренним свойствам сверхпроводника, таким как симметрия параметра порядка. В частности, высокотемпературные сверхпроводники с d-симметрией параметра порядка щели могут иметь сильный НЭМ при стремлении температуры T к нулю за счет низко лежащих возбуждений вблизи минимумов сверхпроводящей щели [4].

При низких температурах нелинейный СВЧ отклик может быть также обусловлен андреевскими связанными состояниями (АСС) [5,6], которые возникают, например, в результате наличия (110) — ориентированной поверхности в высокотемпературных сверхпроводниках. Такие интерфейсы на границах двойников могут образовываться спонтанно во время роста эпитаксиальной пленки [7]. Изменение знака параметра порядка приводит к сильному андреевскому отражению квазичастиц на поверхности сверхпроводника. В результате интерференции электронных и дырочных возбуждений образуется связанное состояние, которое приводит к парамагнитному поверхностному току в сверхпроводнике. Для этого механизма НЭМ теория [8] предсказала сильную температурную зависимость коэффициента нелинейности, равную $\sim 1/T^3$ при низких температурах. Также было показано, что нелинейный отклик, обусловленный АСС, может приводить к смене знака нелинейного тока, текущего по сверхпроводнику, и занулению температурной зависимости мощности третьей гармоники.

В то же время, было установлено, что из-за малой длины когерентности ВТСП микроструктура образцов оказывает влияние на транспортные и магнитные свойства высококачественных пленок YBaCuO. Например, известно, что критический ток пиннинга эпитаксиальных пленок значительно превышает критический ток пиннинга монокристаллов. Такое высокое значение критического тока в пленках YBaCuO связывается с пиннингом вихрей на точечных дефектах, границах двойников, преципитатах или границах гранул (блоков), т. е. с неоднородностью структуры в высококачественных пленках YBaCuO [9,10].

Наиболее сильное влияние микроструктуры наблюдается при исследованиях нелинейных СВЧ свойств ВТСП [11–13]. Это связано с тем, что нелинейные СВЧ свойства довольно чувствительны к различным типам дефектам или междугранульным границам. В этом случае между гранулами образуются джозефсоновские (слабые) связи, которые приводят к нелинейному СВЧ отклику в образце. Для описания СВЧ отклика блочных пленок ВТСП была предложена модель хаотических слабых связей [14], которая описала основные осо-

бенности экспериментальных данных при температурах близких к T_c.

Подтверждением неоднородности структуры пленок YBaCuO являются изображения, полученные с помощью просвечивающего электронного микроскопа и сканирующего туннельного микроскопа [15,16]. Однако следует отметить, что эти изображения, как правило, не используются для исследований корреляции структуры с сверхпроводящими свойствами, поскольку отсутствует возможность получения средних структурных параметров образца. Поэтому для количественных исследований структуры пленок ВТСП применяется метод рентгеноструктурного анализа. В этом случае из ширины рентгеновской линии могут быть определены такие структурные параметры пленки, как средний размер блока (среднее значение области когерентного рассеяния блока) эпитаксиальных пленок, величина микродеформации или разориентации оси c пленки [17–19].

Для изучения локальных нелинейных свойств пленок высокотемпературного сверхпроводника в последнее время были разработаны чувствительные ближнепольные СВЧ микроскопы [20–22]. Эти методы позволяют сделать выводы, как о микроструктуре образца [23], так и о природе сверхпроводящего состояния [21,24].

В работе с помощью метода нелинейной ближнепольной СВЧ микроскопии были изучены температурные зависимости мощности третьей гармоники для ультратонкой пленки YBaCuO с неоднородным распределением толщины $1-6$ nm. С помощью рентгеноструктурного анализа также были исследованы кривые качания пика рентгеновского отражения для этой пленки.

2. Метод исследования и образцы

В работе с помощью ближнепольной СВЧ методики [20,24] были исследованы нелинейные СВЧ свойства ультратонких пленок YBaCuO. Этот метод основан на регистрации нелинейного СВЧ отклика с помощью зонда индуктивного типа. Зонд представляет собой тонкую медную проволочку диаметром $40\,\mu$m закорачивающую внутренний и внешний проводники коаксиального кабеля. Поскольку волновой импеданс коаксиального кабеля значительно больше импеданса закорачивающей проволоки, при отражении СВЧ сигнала от ближнепольного зонда в медной проволоке течет переменный ток высокой плотности. Этот высокочастотный ток создает квазистатическое магнитное поле, локализованное на масштабах порядка размеров зонда. При взаимодействии сильного высокочастотного поля с исследуемым образцом из-за нелинейных свойств сверхпроводника в спектре отраженного сигнала возникают высшие гармоники основной частоты. При этом следует заметить, что ближнепольный зонд используется как для создания СВЧ поля, так и для регистрации отклика сверхпроводника на электромагнитное излучение. Частота первой гармоники в эксперименте была

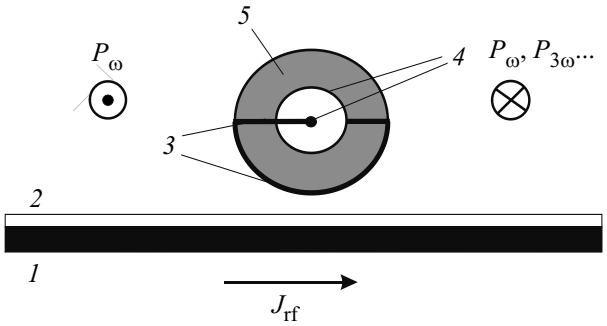

Рис. 1. Схема ближнепольного СВЧ зонда для сканирования вдоль пленки (вид снизу): *1* — пленка ВТСП, *2* — тефлоновая пленка, *3* — проволочка ближенольного СВЧ зонда, *4* — коаксиальный кабель, *5* — тефлоновая муфта. На рисунке также показан падающий и отраженный СВЧ сигнал от ближнепольного зонда и СВЧ ток, текущий по образцу.

равна 472 MHz. Уровень падающей мощности на частоте первой гармоники P_ω изменялся в диапазоне от 2 до 10 mW. Локальный метод исследования нелинейности позволяет исследовать пространственное распределение мощности третьей гармоники $P_{3\omega}(x, y)$ пленок YBaCuO в диапазоне температур от 4.2 K до 100 K.

На рис. 1 приведена схема ближенольного СВЧ зонда для сканирования вдоль пленки (рис. 1). Проволочка зонда при сканировании параллельна краю пленки. Перемещение зонда выполняется механически с помощью поворота винта. Шаг сканирования составлял величину 0.5 mm. Смещение положения ближнепольного СВЧ зонда контролируется с помощью угла поворота винта. Высота фиксируется с помощью тефлоновой пленки толщиной $10\,\mu$m, которая помещается между образцом и ближнепольным СВЧ зондом. Диаметр тефлоновой муфты равен 7 mm.

В работе была изучена двухслойная структура YBaCuO/Au. Эпитаксиальная пленка YBaCuO, ориентированная по оси c, с неоднородным распределением толщины $d = 1-6$ nm была получена методом магнетронного распыления на постоянном токе. Пленка была выращена на подложке $LaAlO_3$ в форме диска диаметром 32 mm в газовой смеси $Ar(50\,\%)/O_2$ под давлением 65 Pa при температуре подложки 840 °C. В этих условиях расчетная скорость осаждения составляла приблизительно 20 nm/hour. Затем на пленку YBaCuO с небольшим разрывом вакуума (*ex situ*) был нанесен слой золота толщиной 20 nm, который предотвращал контакт с окружающей влагой и обеспечивал долговременную деградацию. Золотая пленка была сформирована методом электронно-лучевого осаждения в высоком вакууме 10^{-8} Torr при температуре около 100 °C. Затем с помощью алмазного скрайбера диск был разрезан на квадраты размером $10\times10\,\text{mm}^2$ и прямоугольники размером $5\times10\,\text{mm}^2$ (рис. 2).

Исследования микроструктуры пленки YBaCuO были выполнены методом рентгеноструктурного анализа

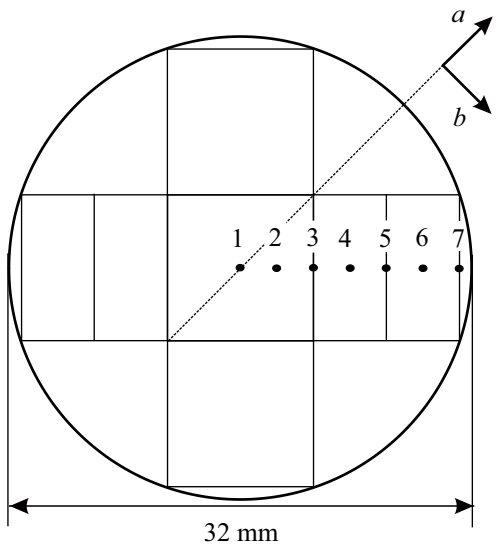

Рис. 2. Схема изготовления двухслойной структуры YBaCuO/Au на подложке $LaAlO_3$ в форме диска. Оси a и b пленки YBCO повернуты на угол 45° относительно краев квадрата.

на дифрактометре Bruker D8 Discover. Эффективная толщина пленки определялась рентгенодифракционным методом в режиме съемки кривой качания (ω — скан с широкой щелью перед детектором) по интегральной интенсивности дифракционного отражения YBaCuO (006). Интегральная интенсивность кривой качания считается пропорциональной толщине пленки. Нормировочным коэффициент находится из интерференционных измерений толщины тестовых структур со ступенькой. Эффективная толщина пленки соответствует толщине однородного слоя YBaCuO, дающего ту же интегральную интенсивность дифракционного отражения при идентичных параметрах измерения [25]. Также были измерены кривые качания пика рентгеновского отражения YBaCuO (006) в различных точках образца (рис. 2).

3. Экспериментальные результаты

Как известно, для сверхпроводящих пленок YBaCuO толщиной 50−100 nm температурная зависимость мощности третьей гармоники демонстрирует максимум вблизи критической температуры перехода T_c [20,23]. В то же время, с помощью метода нелинейной ближнепольной СВЧ микроскопии недавно было обнаружено возрастание нелинейного СВЧ отклика в области низких температур для ультратонких пленок YBaCuO толщиной 4−5 nm [24,26]. В этих работах была изучена зависимость мощности третьей гармоники от ориентации проволочки ближнепольного СВЧ зонда в ее центре. Было установлено, что максимальное значение нелинейности наблюдается в направлении осей $a-b$ пленки. Полученные экспериментальные результаты указывали на то, что в области низких температур нелинейный СВЧ отклик был связан с наличием андреевских краевых состояний, возникающих на интерфейсах границ двойников [24]. Следует отметить, что для увеличения чувствительности экспериментальной установки были исследованы тонкие сверхпроводящие пленки. Это было обусловлено тем, что уменьшение их толщины приводит к увеличению нелинейного СВЧ сигнала из-за увеличения плотности сверхпроводящего тока, текущего по ней.

В то же время, остался вопрос о том, почему этот механизм нелинейности наблюдался в диапазоне толщин 4−5 nm. Поэтому в настоящей работе нами были проведены исследования нелинейного СВЧ отклика и изучена микроструктура при разной толщине ультратонких пленок YBaCuO.

На рис. 3 показаны температурные зависимости мощности третьей гармоники $P_{3\omega}(T)$ пленки YBaCuO при различных расстояниях R от центра диска. Из рис. 3 видно, что температурная зависимость нелинейного СВЧ отклика демонстрирует максимум вблизи температуры порядка 80 K. Кроме этого, в области низких температур наблюдается возрастание мощности третьей гармоники $P_{3\omega}(T)$ при уменьшении температуры. Как было показано в работе [24], это увеличение нелинейного СВЧ отклика при низких температурах связано с наличием андреевских связанных состояний, возникающих на интерфейсах границ двойников.

На рис. 4 приведены температурные зависимости мощности третьей гармоники $P_{3\omega}(T)$ пленки YBaCuO при дальнейшем увеличении расстояния R от центра диска. Из рис. 4 видно, что с ростом расстояния R максимум мощности третьей гармоники $P_{3\omega}(T)$ уширяется и смещается в сторону более низких температур, что указывает на подавление критической температуры пленки YBaCuO. Следует отметить, что при расстоянии $R = 6$ mm также наблюдается возрастание мощно-

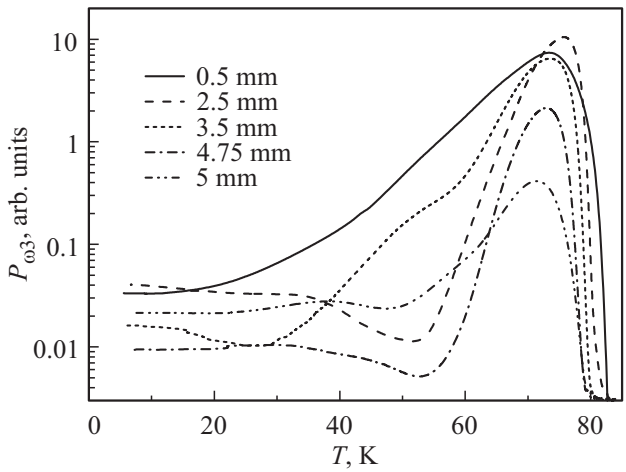

Рис. 3. Температурные зависимости мощности третьей гармоники $P_{3\omega}(T)$ пленки YBaCuO при различных расстояниях R от центра диска. Угол между направлением осей $a-b$ и краем образца составляет 45°. Мощность СВЧ сигнала составляет $P_\omega = 7$ dBm.

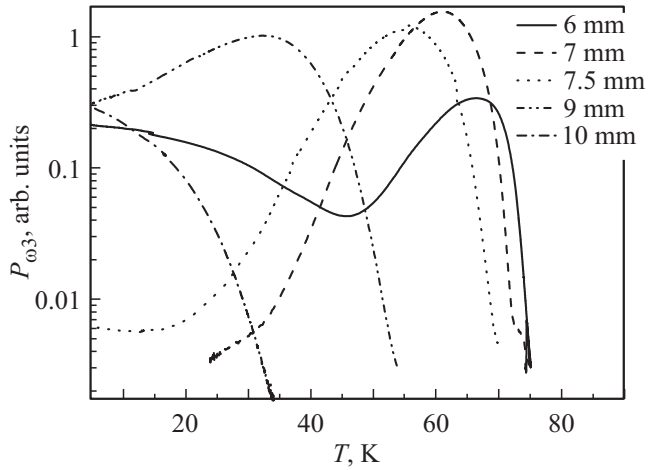

Рис. 4. Температурные зависимость мощности третьей гармоники $P_{3\omega}(T)$ пленки YBaCuO при различных расстояниях R от центра диска. Угол между направлением осей $a-b$ и краем образца составляет 45°. Мощность СВЧ сигнала составляет $P_{\omega} = 3$ dBm.

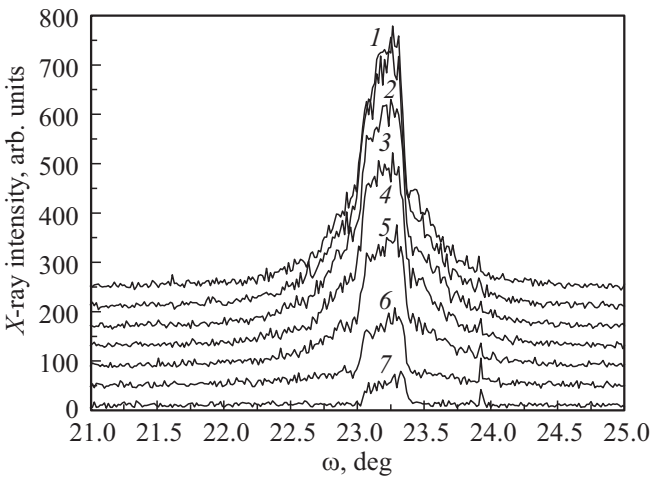

Рис. 5. Кривые качания пика рентгеновского отражения YBaCuO (006) в различных точках образца. Кривые построены со смещением 40 по вертикальной оси.

сти третьей гармоники $P_{3\omega}(T)$ в области низких температур. Следует заметить, что на рис. 3 и рис. 4 мощность СВЧ сигнала выбиралась для наилучшего наблюдения низкотемпературных особенностей на $P_{3\omega}(T)$.

При сканировании с помощью метода ближепольной СВЧ микроскопии в противоположном направлении пленки картина качественно не менялась. В частности, из-за неоднородности сверхпроводящих параметров пленки YBaCuO низкотемпературные особенности на температурной зависимости мощности третьей гармоники наблюдались при других значениях R, но при близких значениях толщины пленки.

На рис. 5 показаны кривые качания пика рентгеновского отражения YBO (006) в различных точках образца. В таблице также приведены рентгенометрические данные, полученные после обработки рентгенограмм с помощью модели двух пиков для пленки YBaCuO в различных точках

Рентгенометрические данные, полученные после обработки рентгенограмм с помощью модели двух пиков для пленки YBaCuO в различных точках

№ точки	$I_{\omega 1}$, arb. units.	$\Delta\omega_1$, deg.	$I_{\omega 2}$, arb. units.	$\Delta\omega_2$, deg.	R, mm	h_{eff}, nm
1	40	0.27	105	0.86	0	6
2	42	0.25	110	0.88	2.5	6
3	38	0.27	101	0.82	5	5
4	35	0.29	86	0.94	7.5	4
5	25	0.27	50	1.2	10	3
6	15	0.32	19	1.4	12.5	1.5
7	7	0.27	–	–	15	0.5

ческие данные, полученные после обработки рентгенограмм с помощью модели двух пиков. Как известно, структурное совершенство слоя YBaCuO можно характеризовать полушириной $\Delta\omega$ кривой качания, которая связана с разориентацией осей с различных блоков мозаики [27,28]. Из рис. 5 видно, что кривые качания имеют две компоненты. На всех кривых виден узкий пик с полушириной $\Delta\omega_1 = 0.25-0.32$ deg, а при увеличении толщины пленки YBaCuO на этих кривых появляется более широкая компонента $\Delta\omega_2 = 0.82-1.4$ deg. При этом следует отметить, что, поскольку сканирование было выполнено с широкой щелью, полуширина узкого пика кривой качания $\Delta\omega$ определяется также аппаратной функцией дифрактометра.

Следует отметить, что поскольку кривые качания состоят из двух пиков (рис. 5 и табл.), это указывает на то, что пленка состоит из двух фаз с различной ориентацией осей c. В диапазоне толщин h_{eff} от 0.5 до 3 nm пленка растет в виде островков и представляет собой суперкристаллическую фазу с малой разориентацией оси c [29]. В этом случае нелинейный СВЧ отклик не наблюдается из-за отсутствия сплошного протекания тока по пленке. При толщинах больше $h_{\text{eff}} = 3$ nm возникает сплошное протекание тока в пленке YBaCuO и $P_{3\omega}(T)$ демонстрирует широкий пик нелинейности при температуре близкой к T_c (рис. 4). В диапазоне толщин h_{eff} от 3 до 5 nm на температурной зависимости $P_{3\omega}(T)$ наблюдается увеличение нелинейного СВЧ отклика при уменьшении температуры (рис. 3 и рис. 4). В работе [24] было показано, что, во-первых, это возрастание нелинейности при низких температурах, во-вторых, наличие зануления в $P_{3\omega}(T)$ при температурах ниже критической и, в-третьих, анизотропия мощности третьей гармоники указывают на то, что нелинейный СВЧ отклик в области низких температур обусловлен нелинейностью андреевских состояний, возникающих на интерфейсах границ двойников. При этом, поскольку андреевские краевые состояния подавляются разориен-

тацией оси cблоков мозаики, мы считаем, что этот механизм нелинейности наблюдается в суперкристаллической фазе пленки YBaCuO. При дальнейшем увеличении $h_{\text{eff}} > 6\,\text{nm}$ нелинейный отклик, связанный с андреевскими краевыми состояниями, не наблюдается из-за более сильной разориентации оси c блоков мозаики ультратонкой пленки YBaCuO. Следует отметить, что уширение максимума $P_{3\omega}(T)$ вблизи T_c и подавление критической температуры пленки YBaCuO обусловлено уменьшением ее толщины (рис. 4).

В заключение следует также заметить, что латеральная неоднородность пленки по толщине определяется соотношением размеров подложки и зоны эрозии мишени. При используемых рабочих давлениях (десятки Pa) и расстоянии мишень-подложка более 30 mm, мы считаем какие-либо неоднородности плазмы не влияющими на латеральную неоднородность микроструктуры растущей пленки. Напрямую это доказывается тем, что при увеличении общей толщины пленки YBaCuO видимые различия микроструктуры пленки в центре и на краю подложки исчезают, остается лишь неоднородность по толщине. В данном случае интересно именно то, что единственный образец позволяет наиболее точно и непосредственно проследить зависимость особенностей микроструктуры YBaCuO от толщины пленки на начальных стадиях роста, т.е. не требуется использовать серию различных образцов, полученных в различных циклах напыления.

4. Выводы

Изучены локальные нелинейные СВЧ свойства ультратонкой пленки YBaCuO с неоднородным распределением толщины. С помощью рентгеноструктурного анализа и метода ближнепольной СВЧ микроскопии установлено, что ультратонкая пленка YBaCuO состоит из двух сверхпроводящих фаз с различной разориентацией оси c. Экспериментальные результаты указывают на то, что нелинейный СВЧ отклик в области низких температур обусловлен наличием андреевских краевых состояний в суперкристаллической фазе пленки YBaCuO.

Финансирование работы

В работе использовано оборудование ЦКП „Физика и технология микро- и наноструктур“. Работа выполнена при поддержке гранта РНФ № 25-22-00204.

Конфликт интересов

Авторы заявляют. что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] T.B. Samoilova. Supercond. Sci. Tech. **8**, 259 (1995).
[2] J.C. Amato, W.L. McLean. Phys. Rev. Lett. **37**, 930 (1976).
[3] Г.И. Левиев, А.В. Рыляков, М.Р. Трунин. Письма в ЖЭТФ **50**, 78 (1989).
[4] S.K. Yip, J.A. Sauls. Phys. Rev. Lett. **69**, 2264 (1992).
[5] C.-R. Hu. Phys. Rev. Lett. **72**, 1526 (1994).
[6] Y.S. Barash, M.S. Kalenkov, J. Kurkijärvi. Phys. Rev. B **62**, 6665 (2000).
[7] А.В. Варганов, Е.А. Вопилкин, П.П. Вышеславцев, Ю.Н. Ноздрин, С.А. Павлов, А.Е. Парафин, В.В. Таланов. Письма в ЖЭТФ **63**, 608 (1996).
[8] A. Zare, T. Dahm, N. Schopohl. Phys. Rev. Lett. **104**, 237001 (2010).
[9] A.A. Polyanskii. A. Gurevich, A.E. Pashitski, N.F. Heinig, R.D. Redwing, J.E. Nordman, D.C. Larbalestier. Phys. Rev. B **53**, 8687 (1996).
[10] J.M. Huijbregtse, B. Dam, R.C.F. van der Geest, F.C. Klaassen. R. Elberse, J.H. Rector, R. Griessen. Phys. Rev. B, **62**, 1338 (2002).
[11] G. Hampel, B. Batlogg, K. Krishana, N.P. Ong, W. Prusseit, H. Kinder, A.C. Anderson. Appl. Phys. Lett. **71**, 3904 (1997).
[12] J. Halbritter. J. of Supercond. **8**, 691 (1995).
[13] P.P. Nguyen, D.E. Oates, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus. Phys. Rev. B, **48**, 6400 (1993).
[14] T.L. Hylton, A. Kapitulnik, M.R. Beasley. Appl. Rev. Lett. **53**, 1343 (1988).
[15] J. Halbritter. Phys. Rev. B, **48**, 9735 (1993).
[16] Y. Yang, L. Li, Y. Wu. Supercond. Sci. Technol. **10**, 156 (1997).
[17] T.S. Argunova, R.N. Kyutt, M.P. Scheglov, N.N. Faleev. J. Phys. D: Appl. Phys. **28**, A212 (1995).
[18] A.V. Bobyl, M.E. Gaevskii, S.F. Karmanenko, R.N. Kutt, R.A. Suris, I.A. Khrebtov, A.D. Tkachenko, A.I. Morosov. J. Appl. Phys. **82**, 1274 (1997).
[19] Д.В. Мастеров, С.А. Павлов, А.Е. Парафин, П.А. Юнин. ЖТФ **90**, 1677 (2020).
[20] E.E. Pestov, Yu.N. Nozdrin, V.V. Kurin. IEEE Trans. on Appl. Supercond. **11** 131 (2001).
[21] A.P. Zhuravel, B.G. Ghamsari, C. Kurter. Phys. Rev. Lett. **110**, 087002 (2013).
[22] A.P. Zhuravel, S. Bae, S.N. Shevchenko, A.N. Omelyanchouk, A.V. Lukashenko, A.V. Ustinov, S.M. Anlage. Phys. Rev. B **97**, 054504 (2018).
[23] S.V. Baryshev, E.E. Pestov, A.V. Bobyl, Yu.N. Nozdrin, V.V. Kurin. Phys. Rev. B, **76**, 054520 (2007).
[24] Е.Е. Пестов, М.Ю. Левичев, П.А. Юнин, Д.В. Мастеров, А.Е. Парафин, С.А. Павлов, Д.А. Савинов. ФТТ **66**, 809 (2024).
[25] Б.А. Володин, А.К. Воробьев, Ю.Н. Дроздов, Е.Б. Клюенков, Ю.Н. Ноздрин, А.И. Сперанский, В.В. Таланов. Письма в ЖТФ **21**, 90 (1995).
[26] Е.А. Архипова, А.И. Елькина, Д.В. Мастеров, С.А. Павлов, А.Е. Парафин, Е.Е. Пестов, П.А. Юнин, Д.А. Савинов. ФТТ **66**, 1264 (2024).
[27] Р.К. Белов, Б.А. Володин, А.К. Воробьев, П.П. Вышеславцев, С.А. Гусев, Ю.Н. Дроздов, Е.Б. Клюенков, Ю.Н. Ноздрин, В.В. Таланов. ФТТ **37**, 785 (1995).
[28] M. Birkholz. Thin Film Analysis by X-Ray Scattering. Wiley–VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. (2006). 356 p.
[29] V.F. Solovyov, K. Develos-Bagarinao, D. Nykypanchuk. Phys. Rev. B **80**, 104102 (2009).

Редактор В.В. Емцев