

Обнаружение второй гармоники фазовой зависимости сверхпроводящего тока в гетеропереходах Nb/Au/YBCO

Ф. В. Комиссинский^{*+}, Г. А. Овсянников^{*1)}, Е. Ильичев[□], З. Иванов⁺

^{*} Институт радиотехники и электроники РАН, 103907 Москва, Россия

⁺ Chalmers University of Technology, S 411 96 Göteborg, Sweden

[□] Institute for Physical High Technology, Department of Cryoelectronics
P.O. Box 100239, D-07702 Jena, Germany

Поступила в редакцию 21 февраля 2001 г.

После переработки 12 марта 2001 г.

В гетеропереходах Nb/Au/(001)YBa₂Cu₃O_x экспериментально обнаружена вторая гармоника зависимости сверхпроводящего тока от разности фаз сверхпроводящих волновых функций электродов и обсуждаются возможные причины ее появления в рамках комбинированной $d \pm s$ симметрии параметра порядка YBa₂Cu₃O_x.

PACS: 74.50.+r

В настоящее время установлено, что большинство металлооксидных высокотемпературных сверхпроводников (МВС) имеют d -симметрию сверхпроводящего параметра порядка [1]. Это наиболее четко проявилось в экспериментах по изучению сверхпроводящих квантовых интерферометров (СКВИД), содержащих переходы из обычного (имеющего s -тип симметрии параметра порядка) сверхпроводника (S), подключенного к двум ортогональным направлениям базовой плоскости МВС [2]. Ситуация с транспортом электронов в МВС/S переходах (/ – потенциальный барьер) перпендикулярно базовой плоскости МВС до сих пор остается неясной [3–6]. Вследствие d -симметрии параметра порядка МВС сверхпроводящий ток в этих гетеропереходах должен быть мал (пропорционально второй степени усредненной прозрачности границы \bar{D}^2) и в два раза чаще изменяться с разностью фаз, то есть содержать компоненту, соответствующую второй гармонике ток-фазовой зависимости (ТФЗ) [7]. Однако наблюдаемый в экспериментах [3–6] критический ток, умноженный на нормальное сопротивление, слабо зависит от прозрачности границы, но уменьшается, если вместо монокристалла используется эпитаксиальная пленка МВС [5]. Экспериментальные данные удаётся объяснить, предполагая, что в МВС имеется смесь s - и d -типов сверхпроводящего параметров порядка, причем, на двойниковой границе происходит изменение знака s -компоненты (изменение ее фазы на π), а d -компонента не изменяется [6]. Исследования

ТФЗ-переходов Pb/YBa₂Cu₃O_x по появлению ступенек Шапиро при воздействии излучения миллиметрового диапазона показали отсутствие второй гармоники ТФЗ с точностью до 5% [5].

В настоящей работе сообщается об экспериментальном исследовании ТФЗ-гетеропереходов из ниобия (s -сверхпроводник) и s -ориентированной пленки YBa₂Cu₃O_x (YBCO) с дополнительной прослойкой из золота (Nb/Au/YBCO). Измерение ТФЗ производилось с использованием радиочастотного сверхпроводящего квантового интерферометра (СКВИД). В эксперименте обнаружена вторая гармоника ТФЗ и приводятся оценки, которые показывают, что электронный транспорт в гетеропереходах на (001)YBCO определяется контактом s - и ($d-s$)-сверхпроводников.

Эпитаксиальные пленки (001) YBCO толщиной 150 нм выращивались методом лазерного напыления на подложках из (001) LaAlO₃ и (001) SrTiO₃. Температура сверхпроводящего перехода пленок определялась магнитно-индукционным методом и составляла $T_c = 88 \div 90$ К. Непосредственно после напыления без разрыва вакуума YBCO пленка покрывалась тонким слоем Au, что предотвращало деградацию поверхности YBCO и позволяло получать границы раздела с низким характерным сопротивлением $r \equiv R_N A = 10^{-5} \div 10^{-6}$ Ом·см² (R_N и A – нормальное сопротивление и площадь контакта, соответственно). Напыление Nb пленки производилось методом магнетронного распыления на постоянном токе. Отметим, что непосредственный контакт Nb/YBCO давал границу с значительно более высоким харак-

¹⁾ e-mail: gena@hitech.cplire.ru

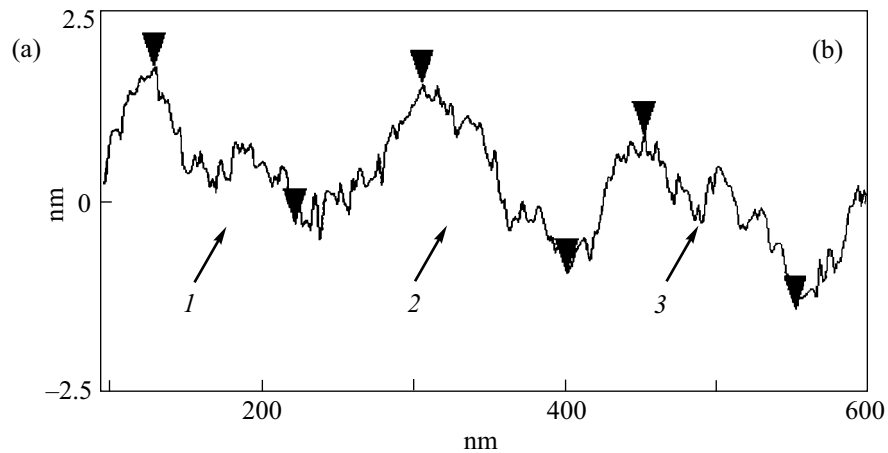


Рис.1. (а) Двумерная профилограмма (001) YBCO пленки, полученная с помощью микроскопа атомных сил; (б) поперечное сечение пленки. Цифрами указаны участки пленок, где проводилось измерение расстояний между метками. Максимальное расстояние между метками по горизонтали 100 нм, вертикальное ~ 3 нм, то есть $\gamma \approx 2^\circ$

терным сопротивлением $r \sim 10^{-2}$ Ом \cdot см². Фотолитография и ионно-лучевое травление низкоэнергетическими ионами аргона использовались для формирования геометрии гетеропереходов Nb/Au/YBCO (толщина золота 8–20 нм и ниобия – 200 нм), в которых ток протекает перпендикулярно подложке (вдоль оси c YBCO) и отсутствуют контакты с базовой плоскостью YBCO пленки [8, 9].

Для уменьшения влияния транспорта вдоль базовой плоскости, вызванного шероховатостью поверхности, проводилась оптимизация процесса роста с целью получения гладкой поверхности YBCO пленок. Контроль морфологии пленок проводился с помощью микроскопа атомных сил высокого разрешения на контрольных образцах. Используемые в гетеропереходах (001) YBCO пленки демонстрировали максимальную неровность поверхности (рассчитанную как разность между точками максимального и минимального отклонений от плоскости подложки) 3 нм при расстоянии между этими точками по горизонтали 100 нм (рис.1). Это позволяет оценить типичный средний угол γ наклона участков поверхности YBCO пленки к плоскости (001) YBCO как $\gamma \approx 2^\circ$. Для оценки вклада в измеряемое сопротивление электронного транспорта, обусловленного контактом с базовой плоскостью YBCO пленки, мы использовали расчеты характерного сопротивления границ r между Au и YBCO [8, 9]. Сопротивление r гетеропереходов определялось из условия параллельного соединения сопротивлений границ между Au и YBCO вдоль оси c (r_c) и в базовой плоскости YBCO (r_{ab}), вызванных рассогласованием ферми-скоростей контактиру-

ющих материалов, имеющих резкую границу раздела:

$$r = r_c r_{ab} / (r_{ab} + r_c \operatorname{tg} \gamma), \quad (1)$$

где $\operatorname{tg} \gamma \approx A_{ab}/A$, A_{ab} – суммарная площадь контактов с базовой плоскостью YBCO пленки. Наклонные поверхности пленки заменялись набором плоскостей (001) YBCO и перпендикулярных к ним, которые имели характерные сопротивления r_c и r_{ab} , соответственно. Для типичной анизотропии ферми-импульсов YBCO порядка 3 в [9] показано, что r_c превышает r_{ab} не более чем на порядок. Следовательно, для неровностей поверхности, наблюдаемых в эксперименте ($\gamma \approx 2^\circ$), ток по контакту с базовой плоскостью мал. Это подтверждается отсутствием в Nb/Au/YBCO переходах при температурах выше критической температуры ниобия и малых напряжениях пика проводимости – аномалии, вызванной андреевским отражением в d -сверхпроводнике (D). Теория предсказывает появление данной аномалии для шероховатой границы гетеропереходов N/D (N – нормальный металл) даже в случае произвольно ориентированного d -сверхпроводника [10]. Отметим, что ток через сверхпроводящие закоротки Nb с YBCO по проколам Au пленки мал, поскольку измеренное r Nb/YBCO границы на 3–4 порядка превышает сопротивление границ Au/YBCO [8].

Были измерены электрофизические характеристики более 20 одиночных переходов размерами от 10×10 до 100×100 мкм и 5 радиочастотных СКВИД. В таблице представлены типичные параметры одиночных переходов, для которых наблюдается рост критического тока с увеличением площади. Для исследо-

Таблица параметров Nb/Au/YBCO гетеропереходов, измеренных при $T = 4.2$ К

| № перехода | A , мкм ² | d , нм | I_c , мкА | J_c , А/см ² | R_N , Ом | $R_N A$, мкОм·см ² | $I_c R_N$, мкВ | Δ_{Nb} , мВ |
|------------|------------------------|----------|-------------|---------------------------|------------|--------------------------------|-----------------|--------------------|
| SQ1J1 | 100 | 20 | 5 | 5 | 4.4 | 4.4 | 22 | 1.2 |
| SQ1J3 | 10000 | 20 | 181 | 1.81 | 0.15 | 15 | 27 | — |
| SQ1J5 | 100 | 20 | 1.5 | 1.5 | 18.3 | 18.3 | 27.5 | 0.8 |
| SQ3J1 | 100 | 20 | 1 | 1 | 68 | 68 | 68 | 1.1 |
| SQ7J10 | 225 | 8 | 15 | 6.7 | 5.1 | 11.5 | 76.5 | 1.1 |
| SQ7J11 | 10000 | 8 | 234 | 2.3 | 0.05 | 5 | 11.7 | — |
| SQ7J3 | 625 | 8 | 20 | 3.2 | 1.3 | 8.1 | 26 | 1.1 |
| SQ7J4 | 900 | 8 | 23 | 2.6 | 0.83 | 7.5 | 19.1 | 1.2 |
| SQ7J13 | 400 | 8 | 10 | 2.5 | 1 | 4 | 10 | — |
| SQ7J15 | 400 | 8 | 16 | 4 | 1.8 | 7.2 | 28.8 | — |
| SQ7J17 | 100 | 8 | 2 | 2 | 18.8 | 18.8 | 37.6 | 1.2 |
| SQ7J18 | 100 | 8 | 3 | 3 | 10 | 10 | 30 | — |
| SQ10J3 | 100 | 18 | 1.2 | 1.2 | 60 | 60 | 72 | 1.2 |

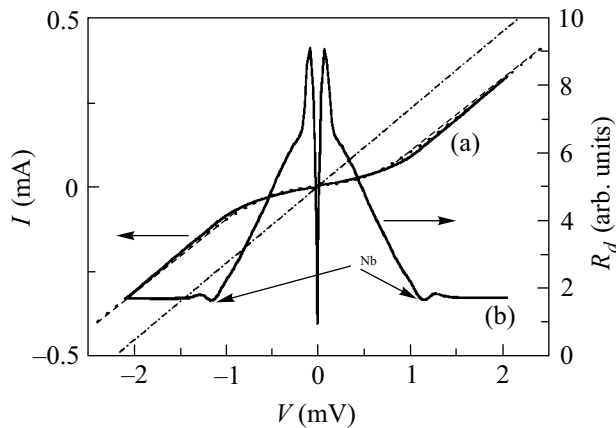


Рис.2. (а) ВАХ и (б) зависимость от напряжения дифференциального сопротивления гетероструктуры при $T = 4.2$ К. Пунктиром на ВАХ показана зависимость, полученная из формулы (2); штрихпунктиром – закон Ома $V = IR_N$

ванных переходов плотность критического тока находилась в диапазоне $j_c = 1 \div 12$ А/см², тогда как $I_c R_N = 10 \div 90$ мкВ, где R_N – нормальное сопротивление перехода, определенное из значения дифференциального сопротивления перехода R_d при напряжении $V \approx 2$ мВ. Вольт-амперная характеристика (ВАХ) и зависимость дифференциального сопротивления перехода R_d от напряжения показаны на рис.2. При малых напряжениях ВАХ перехода хорошо соответствует резистивной модели джозефсоновского перехода с малой емкостью. При увеличении напряжения $V > 2$ мВ ВАХ имеет форму $V = (I + I_e)R_N$, где $I_e < 0$. Избыточный ток $I_e > 0$ наблюдается во всех сверхпроводящих переходах с непосредственной (не

туннельной) проводимостью [11]. Отрицательный I_e (недостаточный ток) – характерная особенность сверхпроводниковых двухбарьерных гетероструктур S/N/S', в которых при уменьшении эффекта близости в N прослойке наблюдается смена знака I_e (происходит переход от избыточного тока к недостаточному) [12–14]. Как видно из рис.2, ВАХ переходов при больших напряжениях хорошо описывается типичным для S/N/S' структур соотношением [12]

$$V = IR_N + I_e R_N \text{th}(eV/kT). \quad (2)$$

Для перехода, показанного на рис.2, $I_e = -145$ мкА при $T = 4.2$ К. Согласно расчету [14], при экспериментальных параметрах исследованных структур должно быть $I_e = (-\bar{D}_1 \Delta_{YBCO} - \Delta_{Nb}) / (eR_N) \approx -270$ мкА, где $r = 10^{-5} \div 10^{-6}$ Ом·см² определяет усредненную по направлениям прозрачность Au/YBCO границы $\bar{D}_1 = 2\rho_c l / 3r = 10^{-4} \div 10^{-5}$, Δ_{YBCO} – параметр порядка YBCO, $\Delta_{Nb} = 1.2$ мВ – щель Nb, а $\rho_c \approx 10^{-2}$ Ом·см и $l \approx 1$ нм – соответственно удельное сопротивление и длина свободного пробега YBCO пленки в c -направлении [9].

На зависимости $R_d(V)$ наблюдается особенность в виде уменьшения R_d при $V = 1.2$ мВ, которая по величине соответствует Δ_{Nb} и имеет температурную зависимость, близкую к БКШ. Особенность исчезает на ВАХ вместе с критическим током при $T = 8.5$ К \div 9.1 К. Температурная зависимость $I_c(T)$ близка к $\Delta_{Nb}(T)$. Отметим, что ранее щелевые особенности s -сверхпроводника (Pb) наблюдались в Pb/YBCO [5, 6].

Для измерения ТФЗ переход размером 10×10 мкм закорачивался YBCO пленкой индуктивностью $L \approx$

≈ 80 пГн и переходом с существенно большей площадью 100×100 мкм, которые образовывали СКВИД. С помощью колебательного контура, индуктивно связанного с кольцом, измерялся импеданс СКВИД в зависимости от внешнего магнитного потока Φ_e . Разность фаз на исследуемом переходе φ определяется магнитным потоком в кольце Φ_i : $\varphi = 2\pi\Phi_i/\Phi_0$, где $\Phi_0 = h/2e = 2.07 \cdot 10^{-15}$ Тл \cdot м² – квант магнитного потока. ТФЗ $f(\varphi) = I_s(\varphi)/I_c$ определяется из измерений разности фаз α между задающим высокочастотным током и напряжением на контуре:

$$\operatorname{tg} \alpha = k^2 Q i_c f'(\varphi) / (1 + i_c f'(\varphi)), \quad (3)$$

где $f'(\varphi) = df(\varphi)/d\varphi_e$, $\varphi_e = 2\pi\Phi_e/\Phi_0$ – нормированный внешний магнитный поток, $i_c = 2\pi LI_c/\Phi_0$ – нормированный критический ток перехода и Q – добротность колебательного контура. ТФЗ рассчитывается из экспериментальных данных по (3) при $i_c < 1$, при этом пренебрегаем влиянием емкости перехода [15].

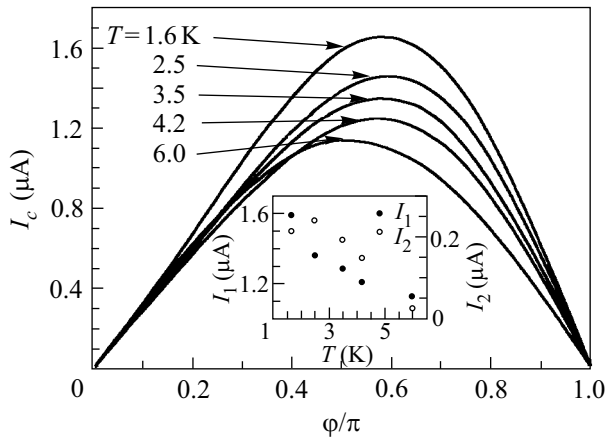


Рис.3. Трансформация ТФЗ гетероструктуры при изменении температуры. На вставке показаны температурные зависимости первой и второй гармоник фурье-преобразования ТФЗ

Экспериментальные зависимости $I_s(\varphi)$ при нескольких температурах показаны на рис.3. Видно, что с уменьшением температуры наблюдается трансформация ТФЗ, которая соответствует возникновению второй гармоники разложения ТФЗ в ряд Фурье по φ . Учитывая лишь две гармоники, получаем $I_s(\varphi) = I_1 \sin \varphi + I_2 \sin(2\varphi + \phi)$. Если, следуя [5], объяснить возникновение двух гармоник ТФЗ наличием комбинированной d - и s -симметрии параметра порядка YBCO, то согласие с экспериментом наблюдается для $d-s$ ($\phi = \pi$). Используя теоретический подход [7], согласно которому параметр порядка в YBCO может быть представлен в виде

$\Delta_{YBCO}(\theta, \psi) = \Delta_{d-YBCO} \sin^2 \theta \cos(2\psi) - \Delta_{s-YBCO}(\theta$ и ψ – азимутальные и радиальные углы, соответственно), а для ниобия $\Delta_{Nb}(\theta, \psi) = 1.2$ мВ, получаем, что при $T = 1.7$ К теория [7] дает наилучшее согласие с экспериментом при следующих параметрах: $\Delta_{d-YBCO} = 20$ мВ, $\Delta_{s-YBCO} = 0.45$ мВ и усредненной прозрачности барьера $\bar{D} \approx 3 \cdot 10^{-2.2}$)

В то же время, для туннельного перехода с прозрачностью границы \bar{D}_1 амплитуды высших гармоник $I_s(\varphi)$ по $\sin(n\varphi)$ пропорциональны высшим степеням прозрачности границы и отношению щелей, то есть должно быть $I_2/I_1 \approx \bar{D}_1 \Delta_{Nb} / \Delta_{s-YBCO} \sim \bar{D}_1$. Следовательно, в рамках этой простой оценки $I_2/I_1 \sim 10^{-4} \div 10^{-5}$. В эксперименте же при $T = 1.7$ К мы имеем $I_2/I_1 \sim 0.16$. Возможно, что определяющими являются два неучтенных в этих простых оценках фактора.

Первое – это двойникование пленки (001) YBCO, которое приводит к смене знака s -компоненты на двойниковой границе и, следовательно, уменьшает амплитудное значение I_1 из-за взаимной компенсации вкладов доменов с разными знаками s -компоненты. При равенстве площадей двойниковых доменов I_1 должен быть равен нулю, а для случайного разброса размеров двойниковых границ I_1 должен увеличиваться пропорционально \sqrt{N} , где N – число двойниковых границ в гетеропереходе [6, 16]. В нашем эксперименте отсутствует характерная для случайного распределения размеров двойниковых доменов пропорциональная \sqrt{N} зависимость величины критического тока от площади перехода (см. таблицу). Фактически мы видим критический ток от нескомпенсированной части доменов δ . Полный сверхпроводящий ток от s -компоненты в гетеропереходе той же площади на недвойниковой (001) YBCO пленке должен быть в δ^{-1} раз больше. В таком случае к исследуемому гетеропереходу качественно применима модель джозефсоновского контакта со знакопеременной плотностью тока [17], которая предсказывает значительную амплитуду второй гармоники в ток-фазовой зависимости [18]. Однако для количественного сравнения теории и эксперимента требуются дальнейшие исследования.

Отметим, что вклад d -компоненты не зависит от количества и распределения размеров двойниковых границ и что мы не видим компоненту $d+is$ (i – мнимая единица). Эта компонента может возникать либо из-за влияния окрестности двойниковых границ, где происходит смена знака $d+s$ на $d-s$ [16], либо из-за

²⁾ $\Delta_{YBCO}(\theta, \psi)$ нормировано в виде $(1/2\pi) \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} \Delta_{YBCO}(\theta, \psi) \sin \theta d\theta d\psi = \Delta_{d-YBCO}$ [7].

изменения знака s -компоненты вблизи поверхности YBCO пленки [19].

Вторая возможная причина существования аномально большого I_2 – это наличие в Nb/Au/YBCO гетероструктуре границы Nb/Au с прозрачностью $\bar{D}_2 \approx 10^{-1}$, влияние которой, как видно из рис.2, проявляется в форме ВАХ. Действительно, для сильно асимметричной двухбарьерной структуры возможно появление второй гармоники ТФЗ [20]. С другой стороны, простые оценки, следующие из уравнения (9) работы [20] показывают, что для исследованных Nb/Au/YBCO гетероструктур $I_2/I_1 \propto \bar{D}_1$ и, следовательно, амплитуда второй гармоники ТФЗ мала. Однако для окончательного ответа на вопрос о влиянии границы Nb/Au на ТФЗ в Nb/Au/YBCO гетероструктурах необходимы точные численные расчеты.

В заключение отметим, что несмотря на общие закономерности поведения исследованных гетеропереходов: форма ВАХ, температурные зависимости критического тока, щелевая особенность от ниобия и т.д., наблюдались достаточно большие (до 100%) разбросы количественных параметров, таких как сопротивление границы раздела, плотность критического тока, отношения первой и второй гармоник ТФЗ и т.д. Здесь определяющими, наряду с границей раздела между Au/YBCO, являются интерфейс Nb/Au и характер двойникования пленок YBCO, которые плохо поддаются контролю электрофизическими методами.

Мы благодарны Д. В. Балашову, П. Н. Дмитриеву, С. А. Ковтонуку и К. И. Константиану за помощь в проведении измерений, А. В. Зайцеву, Т. Клаесону, М. Ю. Куприянову, Т. Лофвандеру, П. Б. Можяеву, И. Танаке, А. Цаленчуку, В. Шумейко за полезные обсуждения. Работа выполнялась при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, Федеральной программы “Актуальные проблемы физики конденсированного состояния”, подпрограмма “Сверхпроводимость”, ИНТАС программы Европейского союза, Шведского консорциума по исследованию новых материалов, Программы “Наука во имя мира”, проект # 973559.

1. C. C. Tsuei and J. R. Kirtley, Rev. Mod. Phys. **72**, 969 (2000).
2. D. A. Wollman, D. J. Van Harlingen, W. C. Lee et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 2134 (1993).
3. H. Akoh, C. Camerlingo, and S. Takada, Appl. Phys. Lett. **56**, 1487 (1990).
4. A. G. Sun, D. A. Gajewski, M. B. Maple et al., Phys. Rev. Lett. **72**, 2267 (1994).
5. R. Kleiner, A. S. Katz, A. G. Sun et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 2161 (1996).
6. K. A. Kouznetsov, A. G. Sun, B. Chen et al., Phys. Rev. Lett. **79**, 3050 (1997).
7. Y. Tanaka, Phys. Rev. Lett. **72**, 3871 (1994).
8. Ф. В. Комиссинский, Г. А. Овсянников, Н. А. Тулина и др., ЖЭТФ **116**, 2140 (1999).
9. Ф. В. Комиссинский, Г. А. Овсянников, З. Г. Иванов, ФТТ **43**, 769 (2001).
10. M. Fogelström, D. Rainer, and J. A. Sauls, Phys. Rev. Lett. **79**, 281 (1997).
11. K. K. Likharev, Rev. Mod. Phys. **51**, 101 (1979).
12. А. В. Зайцев, Письма в ЖЭТФ **51**, 35, 1990.
13. G. E. Babayn, L. V. Filippenko, G. A. Ovsyannikov et al., Supercond. Sci. Technol. **4**, 476 (1991).
14. A. F. Volkov, A. V. Zaitsev, and T. M. Klapwijk, Physica **C210**, 21 (1993).
15. E. Il'ichev, V. Zakosarenko, V. Schultze et al., Appl. Phys. Lett. **72**, 731 (1998). E. Il'ichev, V. Zakosarenko, R. P. J. Ijsselsteijn et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 894 (1998).
16. M. Sigrist, K. Kuboki, P. A. Lee et al., Phys. Rev. **B53**, 2835 (1996).
17. R. G. Mints, Phys. Rev. **B57**, R322 (1998).
18. E. Il'ichev, V. Zakosarenko, R. P. J. Ijsselsteijn et al., Phys. Rev. **B59**, 11502 (1999).
19. R. Haslinger and R. Joynt, J. Phys. Cond. Matt. **12**, 8179 (2000).
20. M. Yu. Kupriyanov, A. Brinkman, A. A. Golubov et al., Physica **C326-327**, 16 (1999).