

МАГНИТОЗАВИСИМОЕ МИКРОВОЛНОВОЕ
ПОГЛОЩЕНИЕ, ОБУСЛОВЛЕННОЕ
СВЕРХПРОВОДЯЩИМИ In-Ga-КЛАСТЕРАМИ
В АРСЕНИДЕ ГАЛЛИЯ, ВЫРАЩЕННОМ
МОЛЕКУЛЯРНО-ЛУЧЕВОЙ ЭПИТАКСИЕЙ

© А.И.Вейнгер, С.В.Козырев, В.В.Чалдышев, М.Д.Вилисова,*
Л.Г.Лаврентьева,* И.В.Ивонин,* Д.И.Лубышев,**
В.В.Преображенский,** Б.Р.Семягин**

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

*Сибирский физико-технический институт им. В.Д.Кузнецова,
634050 Томск, Россия

**Институт физики полупроводников

Сибирского отделения Российской академии наук,

630090 Новосибирск, Россия

(Поступила в Редакцию 8 апреля 1996 г.)

Исследовалось сверхпроводящее поведение сферических In-Ga-кластеров размером $\sim 1 \mu\text{m}$, сформированных на поверхности кристаллической GaAs-матрицы. Обнаружены особенности эффекта магнито­зависимого микроволнового поглощения в условиях, когда глубина проникновения внешнего статического магнитного поля сравнима с размером сверхпроводящего кластера.

Сверхпроводимость в кластерах традиционно считается одной из наиболее фундаментальных проблем науки о кластерах [1]. Прежде всего речь идет о сверхпроводимости в свободных металлических кластерах. Тем не менее представляет интерес изучение сверхпроводящих свойств металлических кластеров, сформированных на поверхности или в объемной матрице. Особенно если речь идет о таком объекте, как кластеры в кристаллическом GaAs. Система GaAs(As) в последние годы интенсивно изучается в связи с рядом важных применений в электронике [2,3].

Нами исследовалось магнито­зависимое микроволновое поглощение (ММП) в системе металлических кластеров Ga-In на поверхности кристаллической GaAs-матрицы. Выбор метода исследования — ММП — определялся его высокой чувствительностью к наличию сверхпроводящей фазы [4], поскольку концентрация кластеров в системе мала. В данной работе мы впервые рассмотрели поведение ММП в сверхпроводнике в ситуации, когда глубина проникновения внешнего стационарного магнитного поля сравнима с размером сверхпроводящего кластера.

1. Образцы и методика эксперимента

Исследования проводились на эпитаксиальных слоях арсенида галлия, выращенных молекулярно-лучевой эпитаксией, в которых за счет низкого отношения потоков As/Ga формировались кластеры элементов III группы. Эпитаксиальные слои выращивались на подложках полупроводящего GaAs с ориентацией (100) и диаметром 40 мм. Слои легировались изовалентной примесью In, концентрация которой в объеме пленки не превышала 0.1 at%. Слой обладал проводимостью n -типа с концентрацией электронов $10^{15} - 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Рентгенодифракционный анализ показал высокое кристаллическое совершенство слоев.

Исследование кластеров на ростовой поверхности проводилось методом электронной микроскопии поверхностных реплик. ММП исследовалось с использованием ЭПР-спектрометра и проточно-гелиевого криостата, способного с высокой степенью точности поддерживать температуру в любой точке от 3 до 300 К. Измерения производились на частоте 9.4 GHz при мощности СВЧ-возбуждения до 50 mW. Регистрировалась первая производная сигнала поглощения dP/dH при частоте модуляции магнитного поля 100 kHz и амплитуде модуляции до 20 Oe.

Электронно-микроскопические исследования показали, что при низких отношениях потоков As/Ga поверхность роста покрыта сферическими образованиями, размер которых составляет 1–2 μm . Электронно-микроскопическое изображение одного из таких кластеров приведено на рис. 1. Принимая во внимание специфические условия эпитаксии, можно предполагать, что эти образования представляют собой капли галлия (жидкого при температуре роста), содержащие также индий. Известно^[5], что при температуре роста 580 °C имеет место сильный эффект сегрегации индия на поверхности. Поэтому можно было ожидать, что концентрация индия в обнаруженных каплях будет значительно (на порядок и более) превышать концентрацию индия в объеме пленки.

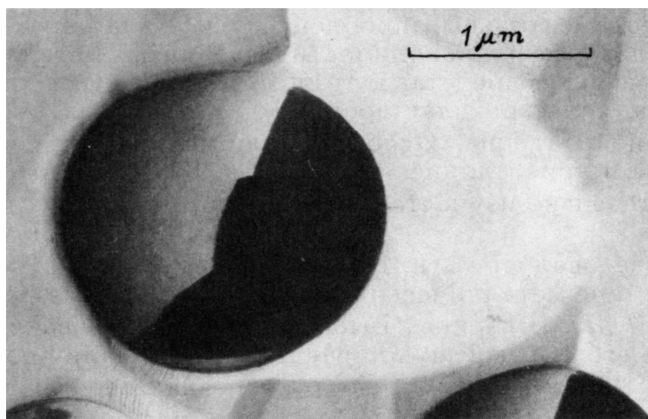


Рис. 1. Электронно-микроскопическое изображение In-Ga-кластера на поверхности эпитаксиальной пленки GaAs.

2. Результаты и обсуждение

Было установлено, что в образцах GaAs, не содержащих описанных выше кластеров, ММП отсутствует в области магнитных полей ≤ 1000 Oe во всем исследованном интервале температур (3.12–300 K). Записанные при температурах 3.12–3.77 K спектры ММП образца, содержащего кластеры, представлены на рис. 2. Видно, что спектр представляет собой довольно узкий пик в полях в несколько сотен эрстед, который смещается в область более слабых магнитных полей с ростом температуры, одновременно уменьшаясь по амплитуде.

Сравнение полученных спектров со спектрами ММП, обусловленными такими явлениями, как магнитосопротивление в полупроводниках, парамагнитный и ферромагнитный резонансы, нерезонансное ММП в антиферромагнетиках и в сверхпроводниках [4], показывает, что приведенные на рис. 2 спектры своими особенностями наиболее близки к спектрам сверхпроводников. Для этих спектров характерно отсутствие ММП в области слабых магнитных полей. Например, при $T = 3.12$ K производная dP/dH начинает быстро увеличиваться только с магнитного поля около 200 Oe, достигает максимума, а затем падает до нуля в магнитном поле около 300 Oe. Это соответствует увеличению микроволнового поглощения в области 200–300 Oe. Никакой из перечисленных выше эффектов, кроме разрушения сверхпроводимости магнитным полем, не дает такой резкой зависимости в этой области магнитных полей.

Другая особенность спектров — их температурная зависимость. С ростом температуры пик производной сдвигается в область слабых магнитных полей. Только в сверхпроводниках наблюдается такая за-

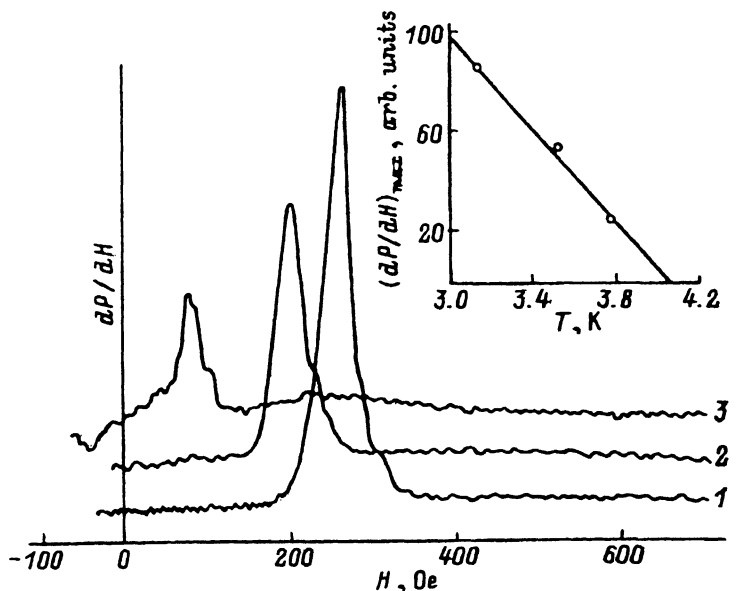


Рис. 2. Спектры магнитозависимого микроволнового поглощения In-Ga-кластеров размером около $1 \mu\text{m}$, сформированных на поверхности GaAs.

Спектры ММП записаны при температурах (K): 1 — 3.12, 2 — 3.52, 3 — 3.77. На врезке — зависимость максимального значения dP/dH от температуры. Аппроксимирующая прямая пересекает ось абсцисс в точке $T = 4.07$ K.

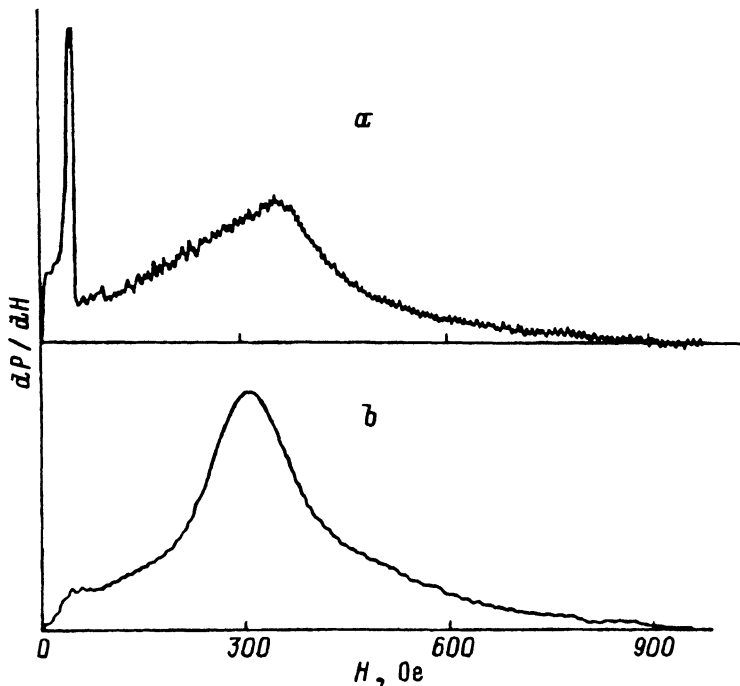


Рис. 3. Спектры магнитозависимого микроволнового поглощения для сферических образцов индий-галлиевого сплава диаметром около 1 мм. Состав сплава: *a* — $\text{In}_{0.875}\text{Ga}_{0.125}$, *b* — $\text{In}_{0.75}\text{Ga}_{0.25}$. Температура измерений 3.12 К.

висимость спектра от температуры. Она связана с тем, что с увеличением температуры T критическое поле сверхпроводника $H_c(T)$ уменьшается в соответствии с хорошо известным соотношением

$$H_c(T) = H_c(0) \left[1 - (T/T_c)^{1/2} \right], \quad (1)$$

где $H_c(0)$ — критическое поле сверхпроводника при $T = 0$, T_c — критическая температура сверхпроводника.

Такая зависимость наблюдалась как для сверхпроводников первого рода [6], так и для сверхпроводников второго рода [4]. Интенсивность наблюдаемых пиков определяется концентрацией Ga-In-кластеров на поверхности арсенида галлия. Таким образом, можно сделать вывод о том, что наблюдаемый эффект ММП обусловлен сверхпроводящими сферическими In-Ga-кластерами, обнаруженными нами методом электронной микроскопии поверхностных реплик.

Для того чтобы выявить особенности ММП в сверхпроводящих сферических кластерах микронного размера, необходимо сравнить его поведение с поведением ММП в объектах сходного химического состава, но макроскопических размеров. Для этого были изготовлены сферические образцы диаметром около 1 мм из In-Ga-сплавов с различным содержанием индия. На рис. 3 показаны спектры ММП для сплавов двух составов. Из этого рисунка видно, что положение главного пика практически не зависит от состава сплава, но в спектре появляется дополнительный пик в слабых магнитных полях. Этот пик, тоже прак-

тически не смешаясь по полю, уменьшается по интенсивности с увеличением содержания галлия в сплаве. Сравняя положение этого пика с ММП в чистом индии, можно видеть, что он расположен в магнитном поле, приблизительно в 2 раза превышающем магнитное поле для чистого индия при той же температуре. Такое поведение спектра ММП согласуется с фазовой диаграммой сплава In-Ga [7], которая показывает, что при застывании жидкой смеси In и Ga образуется смесь двух фаз: индия с небольшой добавкой галлия и индий-галлиевой эвтектики. По мере добавления галлия первая из этих фаз постепенно исчезает, и вместе с ней исчезает дополнительный пик в слабых полях.

Сравнение рис. 2 и 3 показывает, что пики на этих рисунках, полученные при одной и той же температуре, располагаются приблизительно в одних и тех же магнитных полях. Это можно интерпретировать как то, что сферические кластеры состоят из индий-галлиевой эвтектики.

Сравнение рис. 2 и 3 показывает интересные особенности спектров образцов микронных размеров. Прежде всего следует отметить, что микронные сферы имеют гораздо более узкие пики по сравнению с миллиметровыми. В последних проникновение магнитного поля в сверхпроводник начинается практически с нулевых магнитных полей, что отражается в росте производной микроволнового поглощения dP/dH , начиная с $H = 0$, а в магнитных полях $H > H_{\max}$ (H_{\max} — поле максимального значения dP/dH), dP/dH уменьшается, столь плавно приближаясь к нулю, что определить по спектру ММП поле H_{c2} не представляется возможным. В отличие от этого в случае микронных сфер магнитное поле проникает в сверхпроводник, начиная только с 200 Ое (при $T = 3.12$ К), и уже в поле около 300 Ое производная dP/dH практически снова обращается в нуль, т.е. сверхпроводимость полностью разрушается. В этом случае магнитное поле в сферу проникает так же, как в сверхпроводник первого рода, т.е. ширина пика определяется фактором размагничивания, который для сферы равен $1/3$. Поэтому при данной температуре магнитное поле в сферу начинает проникать при значении внешнего магнитного поля $H_{c1}(T) = 2/3 H_c(T)$, а полностью сверхпроводник переходит в нормальное состояние (dP/dH обращается в нуль) в критическом поле $H_c(T)$. Из рис. 2 видно, что при температуре $T = 3.12$ К $H_{c2}(T) \approx 300$ Ое, и поле начинает проникать в образец при $H_{c1} \approx 200$ Ое. Таким образом, соотношение, характерное для сверхпроводников первого рода, выполняется.

Однако спектры (рис. 2) отличаются и от спектров ММП для сверхпроводников первого рода [6]. Пик на рис. 2 при повышении температуры сдвигается в сторону слабых магнитных полей, одновременно уменьшаясь по высоте. В то время как для сверхпроводников первого рода следовало бы ожидать, что при повышении температуры пик, двигаясь в сторону слабых магнитных полей, должен увеличиваться по высоте так, чтобы площадь под кривой dP/dH оставалась постоянной. Причина этого состоит в том, что площадь под кривой определяется разностью между микроволновым поглощением образца в нормальном и сверхпроводящем состояниях. Поскольку первое гораздо больше второго, эта площадь под пиком определяется микроволновым поглощением в нормальном состоянии, которое очень слабо зависит от температуры.

Естественно предположить, что отмеченные особенности спектров ММП сверхпроводящих образцов In-Ga-кластеров обусловлены их малыми размерами. Для выяснения этих особенностей рассмотрим соотношения между размерами образцов и основными характеристическими длинами в сверхпроводниках. Все соотношения, приведенные далее, взяты нами из монографии [8]. Сверхпроводники имеют два основных характерных размера: глубину проникновения магнитного поля в сверхпроводник λ и длину когерентности ξ . Эти величины определяются основными параметрами сверхпроводника и связаны между собой. По нелокальным соотношениям Пипшарда, которые соответствуют феноменологической теории Гинзбурга-Ландау и теории БКШ

$$\lambda = \lambda_L(\xi_0/\xi(l))^{1/2}, \quad (2)$$

где $\lambda_L = (mc^2/4\pi n_s e^2)^{1/2}$ — лондоновская глубина проникновения, m — масса электрона, n_s — концентрация сверхпроводящих электронов, e — заряд электрона, ξ_0 — длина когерентности чистого сверхпроводника, $\xi(l)$ — длина когерентности в сверхпроводниках с небольшой длиной свободного пробега электронов. Эта длина когерентности связана с длиной свободного пробега l соотношением

$$1/\xi(l) = 1/\xi_0 + 1/\alpha l, \quad (3)$$

где α — постоянная порядка единицы.

Для сплавов, в которых $l \ll \xi_0$, можно считать $\xi(l) \approx l$.

Выяснив основные соотношения между характеристическими длинами в сверхпроводниках, мы можем оценить соотношение между глубиной проникновения магнитного поля в сверхпроводник и размерами сверхпроводящих сфер на поверхности полупроводника. Для чистых сверхпроводников $\lambda_L \approx 5 \cdot 10^{-6}$ см; $\xi_0 \approx 10^{-4}$ см. Для сплавов естественно положить, что $l \approx 10^{-8}$ см, т.е. порядка расстояния между соседними атомами. Тогда из (2) $\lambda \approx 5 \cdot 10^{-4}$ см, т.е. $\lambda \gg R$, где R — поперечный размер сверхпроводящей сферы. Таким образом, микроволновое и статическое магнитные поля как в нормальном, так и в сверхпроводящем состояниях пронизывают весь объем сферы. Эта особенность и создает отличия в температурном и полевом поведении спектров ММП для микронных In-Ga-кластеров на поверхности GaAs.

Поскольку микроволновое поглощение определяется концентрацией нормальных электронов в сверхпроводнике, разница между ММП в сверхпроводящем и нормальном состояниях, а следовательно, и значениями dP/dH определяется изменением концентрации нормальных электронов при переходе образца из сверхпроводящего в нормальное состояние. Обычно вблизи T_c связь между концентрацией нормальных n_n и сверхпроводящих n_s электронов считают линейной [8]

$$n_s = n(1 - t), \quad n_n = nt, \quad (4)$$

где n — концентрация электронов в металле, $t = T/T_c$. Тогда, считая, что

$$(dP(T)/dH)_{\max} \sim n - n_n(T) = n(1 - t), \quad (5)$$

получаем, что с приближением температуры к T_c , максимальное значение производной ММП должно линейно уменьшаться, и при T_c обращаться в нуль.

На врезке на рис. 2 показана зависимость $(dP/dH)_{\max}$ от температуры. Видно, что точки с достаточно хорошей точностью укладываются на прямую и $(dP/dH)_{\max}$ обращается в нуль при температуре 4.07 ± 0.07 К, которая, по-видимому, и является критической температурой для сплава, образующего сверхпроводящие сферы на поверхности арсенида галлия. Проверить значение T_c можно, используя соотношение (1) и данные рис. 2. Из этого рисунка следует, что при $T = 3.12$ К $H_c(T) = 330$ Ое и при $T = 3.77$ К $H_c(T) = 120$ Ое. Подставив эти значения в (1) и исключив $H_c(0)$, получаем значение $T_c = 4.16$ К, что хорошо согласуется с приведенным выше значением. Соответствующее такой критической температуре критическое поле при $T = 0$ оказалось равным 750 Ое.

В отличие от кластеров изменение микроволнового поглощения в образцах большого размера с температурой определяется не только соотношением (7), но и зависимостью λ от T . При этом λ растет с увеличением температуры:

$$\lambda \sim (1 - t)^{-1/2}. \quad (6)$$

Отсюда

$$(dP(T)/dH)_{\max} \sim \lambda[n - n_n(T)] \sim (1 - t)^{1/2}. \quad (7)$$

Таким образом, зависимость максимума производной микроволнового поглощения от температуры для больших образцов оказывается гораздо более слабой, чем для кластеров.

Хорошо известно, что с уменьшением характерного размера R сверхпроводника критическое поле H_c , разрушающее сверхпроводимость, увеличивается до H_s . Это увеличение определяется отношением λ/R

$$H_s/H_c \approx \lambda/R. \quad (8)$$

При $\lambda/R \approx 5$ и $H_s = 330$ Ое при $T = 3.12$ К оказывается, что $H_c \approx 70$ Ое, что находится в области существования дополнительного пика рис. 3, а. Отсюда можно сделать вывод о том, что близость максимальных значений dP/dH на рис. 2 и 3 может быть случайной, и сферические кластеры на поверхности пленки арсенида галлия состоят в основном из одного металла (индия или галлия) с небольшой примесью другого. Чистый галлий имеет $T_c = 1.1$ К, а индий – 3.2 К. Однако присутствие примесей и малые размеры кластеров могут увеличить T_c до 4 К. Поэтому на данном этапе установление точного химического состава кластеров по их сверхпроводящим свойствам оказалось затрудненным.

Обратимся теперь к зависимости ширины пика dP/dH от температуры. У всех трех экспериментальных спектров на рис. 2 ширина пика

$$\Delta H \approx H_c(T)/3. \quad (9)$$

Это хорошо согласуется с фактором размагничивания для сферических образцов, который определяет ширину пика в сверхпроводниках первого рода [6]. Казалось бы, можно сделать вывод о том, что исследованные кластеры являются сверхпроводниками первого рода (чистый галлий или чистый индий). Однако можно показать, что соотношение (9) будет выполняться и для сферических кластеров сверхпроводников второго рода, если их размер $R \ll \lambda$. Это связано с тем, что в

сверхпроводниках второго рода малого размера возникновение вихрей должно быть затруднено. Хотя нормальная часть вихря имеет поперечный размер порядка $\xi \ll R$, но экранирующий сверхпроводящий ток течет вокруг нормальной части по кольцу с внешним диаметром порядка λ . Когда $\lambda \gg R$, величина критического тока оказывается недостаточной для полного экранирования магнитного поля. Вполне возможно, что в таких условиях вихри образоваться не могут, и различие между сверхпроводниками первого и второго рода исчезает. Тогда и в сверхпроводниках второго рода ширина пика будет определяться фактором размагничивания, что и наблюдается на рис. 2.

Таким образом, изучение ММП в арсениде галлия со сверхпроводящими In-Ga-кластерами показывает, что эта методика имеет достаточную чувствительность для обнаружения таких кластеров и позволяет определить основные параметры сверхпроводимости в этих образованиях (T_c и $H_c(0)$). Обнаружены специфические особенности эффекта ММП в сверхпроводящих кластерах, размеры которых сравнимы или меньше глубины проникновения магнитного поля. В этом случае 1) ММП линейно уменьшается при приближении к критической температуре; 2) ММП начинается при гораздо больших магнитных полях по сравнению с макроскопическими образцами; 3) для сверхпроводника второго рода ширина пика ММП определяется геометрическим фактором, а не величиной H_{c2} , что характерно для сверхпроводников первого рода.

Список литературы

- [1] Springer Series in Chemical Physics. Clusters of Atoms and Molecules / Ed. H. Huberland. Springer-Verlag (1994). V. 56.
- [2] F.W. Smith, A.R. Calawa, C.L. Chen, M. Manfra, L.J. Mahoney. IEEE Electron. Dev. Lett. **9**, 77 (1988).
- [3] E.R. Brown, K.A. McIntosh, F.W. Smith, K.B. Nichols, M.J. Manfra, C.L. Dennis, J.P. Mattia. Appl. Phys. Lett. **64**, 3311 (1994).
- [4] A.I. Veinger, A.G. Zbrodskii, T.V. Tisnek. Supercond. Sci. Technol. **8**, 368 (1995).
- [5] J.M. Moison, C. Guille, F. Mouzay, F. Barthe, M. van Rompay. Phys. Rev. **B40**, 6149 (1989).
- [6] A.S. Kheifets, A.I. Veinger. Physica **C165**, 491 (1990).
- [7] А.Е. Вол. Строение и свойства двойных металлических систем. Физматгиз. М. (1962). Т. 2. С. 509.
- [8] E.A. Lynton. Superconductivity. Methnen ind Co Ltd. London (1969); (Э. Линтон. Сверхпроводимость. Мир. М. (1971).).