

УДК 538.945

## ИССЛЕДОВАНИЕ НЕЛИНЕЙНОГО СВЧ ОТКЛИКА СВЕРХПРОВОДНИКОВ С ПОМОЩЬЮ ЛОКАЛЬНОЙ МЕТОДИКИ

А. Ю. Аладышкин<sup>1</sup>, А. А. Андронов<sup>1</sup>, Е. Е. Пестов<sup>1</sup>, Ю. Н. Ноздрин<sup>1</sup>, В. В. Курин<sup>1</sup>,  
А. М. Кукколо<sup>2</sup>, Р. Монако<sup>2</sup>, М. Боффа<sup>2</sup>

С помощью локальной методики исследована мощность СВЧ излучения  $P_{3\omega}(T, P_{\omega}, H_{dc})$  на утроенной частоте основного сигнала как функция температуры  $T$ , входной мощности  $P_{\omega}$  и внешнего перпендикулярного поверхности сверхпроводника магнитного поля  $H_{dc}$  для плёнок, монокристаллов, поликристаллов  $YBa_2Cu_3O_7$  (YBCO) и плёнок Nb. Наиболее характерной особенностью температурной зависимости нелинейного отклика  $P_{3\omega}(T)$  сверхпроводников является наличие максимума нелинейности вблизи критической температуры  $T_c$ . Для плёнок YBCO получены пространственные распределения мощности третьей гармоники при различных температурах, которые демонстрируют неоднородное распределение  $T_c$  по поверхности сверхпроводника. При температурах порядка  $2T_c/3$  для плёнок и монокристаллов YBCO в зависимости  $P_{3\omega}(T)$  обнаружены дополнительные максимумы нелинейности, связанные, по-видимому, с наличием нескольких сверхпроводящих фаз с разными критическими температурами. В плёнках Nb второй максимум нелинейности в зависимости  $P_{3\omega}(T)$  возникает только при наличии внешнего магнитного поля. Экспериментальные данные интерпретируются в рамках двухжидкостной модели сверхпроводника, учитывающей феноменологическую нелинейную связь векторного потенциала  $\mathbf{A}$  с плотностью сверхпроводящего тока  $j_s(\mathbf{A})$ . Обсуждается вопрос о природе нелинейности в исследуемых сверхпроводниках.

### ВВЕДЕНИЕ

Отклик сверхпроводников на СВЧ излучение является нелинейным. Это приводит к ряду нелинейных эффектов: зависимости поверхностного импеданса от мощности входного сигнала [1], генерации высших гармоник основной частоты [2] или интермодуляции [3]. Исследования нелинейных СВЧ свойств сверхпроводников были начаты ещё в 1960-х годах (см. обзор [4] и приведённые в нём ссылки, [5]). В этих работах были предприняты первые попытки понимания природы нелинейного СВЧ отклика традиционных сверхпроводников. Интерес к данной тематике возобновился в связи с открытием высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), т. к. сильные нелинейные эффекты регистрируются в высокотемпературных сверхпроводниках при умеренной мощности сигнала (см., например, [2, 3]). Нелинейность СВЧ отклика ВТСП приводит к росту потерь, уменьшению добротности резонаторов и искажению сигналов в линиях передачи, что ограничивает применимость сверхпроводниковых СВЧ устройств. Для объяснения нелинейного отклика сверхпроводников предложено большое количество моделей: нелинейность, связанная с подавлением модуля параметра порядка (нелинейность уравнений Гинзбурга—Ландау) [6, 7], с наличием джозефсоновских (слабых) связей между гранулами в исследуемых образцах [1, 8], с движением вихрей в непараболическом потенциале пиннинга [9], с термически активированными скачками вихрей в потенциале пиннинга [10], с вязким течением вихрей [11], тепловая нелинейность [12, 13] и др. Однако несмотря на большое количество экспериментальных и теоретических работ, посвящённых данной проблеме, вопрос о природе нелинейности сверхпроводников до сих пор остаётся открытым. Поэтому исследование нелинейных свойств сверхпроводников важно как прикладной, так и с фундаментальной точек зрения, поскольку изучение нелинейного отклика связано с исследованием свойств сверхпроводящего состояния.

В настоящей работе с помощью локальной методики (предварительные результаты приведены в [14]) исследована зависимость мощности СВЧ излучения на частоте третьей гармоники основного сигнала от внешнего постоянного магнитного поля и мощности СВЧ сигнала на основной частоте в широком диапазоне температур ( $4 \div 91$  K) для плёнок, поликристаллов, монокристаллов  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (YBCO) и плёнок Nb. Также получены пространственные распределения нелинейного СВЧ отклика для плёнки YBCO при различных температурах ниже  $T_c$ .

Основной качественный результат экспериментальных исследований нелинейного отклика сверхпроводников — это наблюдение пика нелинейности в температурной зависимости мощности третьей гармоники СВЧ излучения  $P_{3\omega}(T)$  в области температур, близких к  $T_c$  (см. также [4, 6, 15, 16]). Локализация нелинейного отклика вблизи  $T_c$  позволяет получать пространственные распределения  $T_c$  на поверхности плёнки YBCO. В то же время, кроме высокотемпературного пика нелинейности (вблизи  $T_c$ ), для плёнок и монокристаллов YBCO при низких температурах обнаружены дополнительные пики в зависимости  $P_{3\omega}(T)$  вблизи  $T \sim 2T_c/3$ . В плёнках Nb второй максимум нелинейности в зависимости  $P_{3\omega}(T)$  возникает только при наличии внешнего магнитного поля.

В этой работе мы обсудим применимость основных механизмов нелинейности (нелинейности Гинзбурга—Ландау, джозефсоновской нелинейности, нелинейности, связанной с движением вихрей, и тепловой нелинейности) к нашим экспериментальным данным и сделаем предположения о природе наблюдаемой нелинейности в сверхпроводниках.

Статья построена следующим образом. В разделе 1 описана общая схема экспериментальной установки и методика измерения нелинейного СВЧ отклика сверхпроводника. В разделе 2 рассчитаны линейный и нелинейный отклики тонкой сверхпроводящей плёнки в слабом СВЧ поле зонда. В разделе 3 приведены характеристики образцов и основные экспериментальные результаты. Раздел 4 посвящён обсуждению и интерпретации полученных экспериментальных результатов. В разделе 5 приведены основные результаты работы и сделаны заключительные замечания.

## 1. СХЕМА ЭКСПЕРИМЕНТА И МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

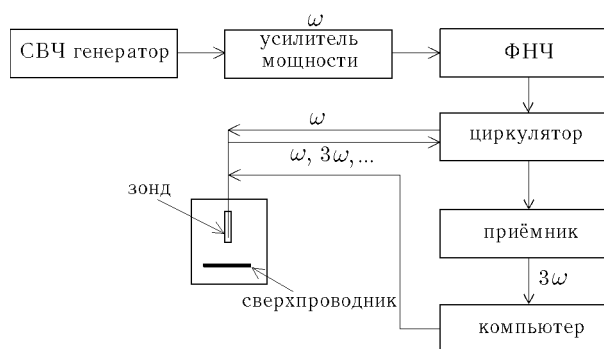


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки для исследования нелинейных СВЧ свойств сверхпроводников

Для исследования нелинейных СВЧ свойств сверхпроводников широкое применение получила резонаторная методика, которая позволяет достичь уровня магнитных полей, необходимых для наблюдения нелинейных эффектов. Для этого используется, как правило, либо микрополосковый резонатор [1], либо объёмный резонатор с помещённым внутрь образцом [15, 17]. Однако с помощью этой методики могут быть определены только средние по поверхности характерные плотности токов и магнитные поля, при которых существенны нелинейные эффекты в сверхпроводнике. Альтернативой резонаторной методике является исследование нелинейных СВЧ свойств сверхпроводников с помощью ближнепольных

СВЧ микроскопов [14, 18]. В этом случае создаётся сильное СВЧ поле, локализованное вблизи ближнепольного зонда на масштабах, много меньших длины волны.

В настоящей работе мы применили локальную методику измерений нелинейного СВЧ отклика сверхпроводника, использующую ближнепольный зонд с индуктивной связью. Блок-схема

экспериментальной установки показана на рис. 1. Описываемая экспериментальная установка позволяет изучать генерацию третьей гармоники основной частоты сверхпроводником в широком температурном интервале ( $4 \div 91$  К). СВЧ генератор является источником сигнала в частотном диапазоне от 0,3 до 1,2 ГГц. В эксперименте частота первой гармоники  $\omega/(2\pi)$  фиксирована и равна 472 МГц. Усилитель мощности используется для увеличения мощности сигнала на основной частоте до 0,1 Вт. Фильтр низких частот (ФНЧ) подавляет гармоники, генерируемые усилителем мощности. Уровень паразитного сигнала на частоте третьей гармоники составляет величину порядка  $10^{-13}$  Вт. После прохождения через циркулятор СВЧ сигнал, распространяющийся по коаксиальному кабелю, подаётся на зонд (рис. 2). Зонд представляет собой медную проволочку длиной  $l = 2$  мм и диаметром  $D \leq 50$  мкм, соединяющую внешний и внутренний проводники коаксиального кабеля. Поскольку волновой импеданс коаксиального кабеля значительно больше импеданса закорачивающей проволоки, при отражении СВЧ сигнала от ближнепольного зонда в медной проволоке течёт переменный ток высокой плотности. Этот высокочастотный ток создаёт квазистатическое магнитное поле, локализованное на масштабах порядка размеров зонда ( $L_{\parallel} \sim 2$  мм,  $L_{\perp} \sim 0,05$  мм, где  $L_{\parallel}$  и  $L_{\perp}$  — продольный и поперечный масштабы локализации магнитного поля соответственно). При взаимодействии сильного высокочастотного поля с исследуемым образцом из-за нелинейных свойств сверхпроводника в спектре отражённого сигнала возникают высшие гармоники основной частоты.

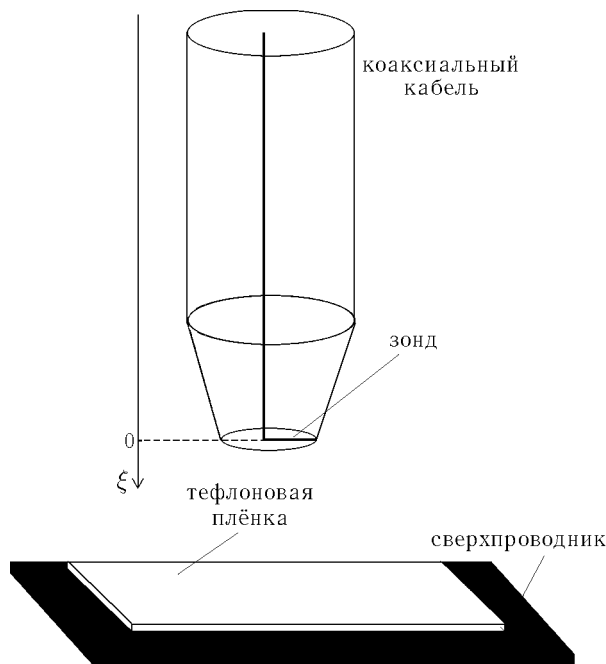


Рис. 2. Конструкция ближнепольного СВЧ зонда

При этом следует заметить, что ближнепольный зонд используется как для создания СВЧ поля, так и для регистрации отклика сверхпроводника на электромагнитное излучение. Для предотвращения электрического контакта зонда с исследуемым образцом, приводящего к генерации паразитного сигнала на частоте третьей гармоники, на образец помещается тефлоновая плёнка толщиной 10 мкм. После прохождения через циркулятор (см. рис. 1) мощность третьей гармоники измеряется приёмником, и её значение считывается компьютером. В экспериментах мы также использовали систему позиционирования, которая позволяет проводить сканирование образца в плоскости плёнки. Управление этой системой осуществляется с помощью компьютера.

## 2. ЛИНЕЙНЫЙ И НЕЛИНЕЙНЫЙ ОТКЛИКИ ТОНКОЙ СВЕРХПРОВОДЯЩЕЙ ПЛЁНКИ НА СВЧ ИЗЛУЧЕНИЕ

### 2.1. Отражение СВЧ сигнала от ближнепольного зонда

Рассмотрим задачу об отражении электромагнитной волны, распространяющейся по коаксиальному кабелю с волновым сопротивлением  $Z_0$  от зонда, имеющего импеданс  $Z_{\text{tot}}$  при  $\xi = 0$

(см. рис. 2). Предполагая, что ток и напряжение в коаксиальном кабеле зависят от времени как  $\exp(i\omega t)$ , запишем выражения для амплитуды тока  $I_\omega$  и напряжения  $U_\omega$  на частоте  $\omega$ :

$$I_\omega = I_\omega^i \exp(-ik\xi) + I_\omega^r \exp(ik\xi), \quad (1)$$

$$U_\omega = Z_0 [I_\omega^i \exp(-ik\xi) - I_\omega^r \exp(ik\xi)], \quad (2)$$

где  $I_\omega^i$  и  $I_\omega^r$  — амплитуды тока в падающей и отражённой волнах соответственно. Тогда амплитуда тока в закорачивающей проволоке (при  $\xi = 0$ ) равна

$$I_\omega = I_\omega^i \frac{2Z_0}{Z_0 + Z_{\text{tot}}}. \quad (3)$$

Волновое сопротивление коаксиального кабеля в нашем случае равно  $Z_0 = 50$  Ом. Оценим импеданс нагрузки  $Z_{\text{tot}}$ . Импеданс  $Z_{\text{tot}}$  является суммой импеданса  $Z_{\text{in}}$ , связанного с внутренней индуктивностью и активным сопротивлением зонда, и импеданса  $Z_{\text{ext}}$ , соответствующего внешней индуктивности провода. На частоте  $\nu = \omega/(2\pi) = 0,5$  ГГц при  $T = 77$  К толщина скин-слоя в меди составляет  $\delta(T = 77 \text{ К}) \sim 0,6$  мкм, и для проволоки радиуса  $R = 10 \div 25$  мкм скин-эффект является сильным, т. е.  $R \gg \delta$ . Импеданс провода  $Z_{\text{in}}$  в случае сильного скин-эффекта имеет вид [19]

$$Z_{\text{in}} = \frac{(1-i)l}{2\pi R\sigma\delta}, \quad (4)$$

где  $\sigma$  — проводимость меди,  $l$  — длина зонда. Полагая  $R = 25$  мкм,  $l = 2$  мм,  $\sigma(T = 77 \text{ К}) = 6 \cdot 10^8$  (Ом · м) $^{-1}$ ,  $\delta(T = 77 \text{ К}) = 0,6$  мкм [20], получаем, что при азотной температуре  $Z_{\text{in}} \approx 0,1$  Ом. Для оценки импеданса  $Z_{\text{ext}}$  воспользуемся формулой [19]

$$Z_{\text{ext}} = -i\omega \frac{\mu_0}{\pi} \ln(2a/R) l, \quad (5)$$

полученной для провода, расположенного на высоте  $a$  над поверхностью сверхпроводящей плёнки. Здесь  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$  Гн/м — магнитная постоянная. Подставляя  $a = 35$  мкм,  $R = 25$  мкм,  $l = 2$  мм, получаем  $Z_{\text{ext}} \approx 2,4$  Ом.

Из приведённых выше оценок видно, что импеданс нагрузки  $Z_{\text{tot}} \approx 2,5$  Ом на данных частотах много меньше волнового импеданса:  $Z_{\text{tot}} \ll Z_0$ , и формула (3) может быть преобразована к виду

$$I_\omega \approx 2I_\omega^i. \quad (6)$$

Таким образом, амплитуда  $I_\omega$  тока, текущего по проволоке, вдвое больше амплитуды  $I_\omega^i$  тока в падающей волне, распространяющейся по коаксиальному кабелю.

## 2.2. Линейный отклик

Рассмотрим теперь задачу о возбуждении экранирующих токов в тонкой сверхпроводящей плёнке зондом, расположенным на расстоянии  $a$  от поверхности сверхпроводника (рис. 3). Выберем систему декартовых координат  $(x, y, z)$  так, чтобы плоскость  $x = 0$  совпадала с поверхностью плёнки, а ось  $z$  была направлена вдоль медной проволоки. Поскольку длина электромагнитной волны, распространяющейся по коаксиальному кабелю, равна  $\tilde{\lambda} = 2\pi c/\omega \approx 60$  см ( $c = 3 \cdot 10^8$  м/с — скорость света в вакууме) и  $\tilde{\lambda} \gg \max\{a, D\}$ , эту задачу можно решить в квазистатическом приближении. Кроме того, поскольку длина медной проволоочки значительно больше её диаметра

( $l \gg D$ ), в дальнейшем будем считать, что плотность стороннего тока  $j_{\omega}^{\text{ext}}$  не зависит от координаты  $z$ :

$$j_{\omega}^{\text{ext}} = I_{\omega} \delta(x - a, y). \quad (7)$$

Для сверхпроводящей плёнки запишем материальную связь  $\mathbf{j} = \mathbf{j}(\mathbf{E})$ , воспользовавшись для простоты двухжидкостной моделью сверхпроводника  $\mathbf{j}_{\omega} = \mathbf{j}_{\omega}^{\text{n}} + \mathbf{j}_{\omega}^{\text{s}}$  [21]:

$$\mathbf{j}_{\omega}^{\text{n}} = \sigma_{\omega}^{\text{n}} \mathbf{E}_{\omega}, \quad (8)$$

$$\mathbf{j}_{\omega}^{\text{s}} = \sigma_{\omega}^{\text{s}}(T) \mathbf{E}_{\omega} = \frac{-i \mathbf{E}_{\omega}}{\mu_0 \omega [\lambda(T)]^2}, \quad (9)$$

где  $\sigma_{\omega}^{\text{n}}$  и  $\sigma_{\omega}^{\text{s}}$  — проводимости, обусловленные нормальными и сверхпроводящими электронами,  $\lambda(T) = \lambda_0 / \sqrt{1 - (T/T_c)^4}$  — лондоновская глубина проникновения. Оценим соотношение между  $\sigma_{\omega}^{\text{n}}$  и  $\sigma_{\omega}^{\text{s}}$ . Подставляя в (9) типичные параметры сверхпроводящих плёнок [22]  $\lambda_0 = 1390 \text{ \AA}$  (YBCO) или  $\lambda_0 = 390 \text{ \AA}$  (Nb),  $\nu \simeq 0,5 \text{ ГГц}$ ,  $\sigma_{\omega}^{\text{n}} \simeq 10^6 (\text{Ом} \cdot \text{м})^{-1}$ , получаем, что область температур  $\Delta T_1$  вблизи  $T_c$ , в которой неравенства  $\sigma_{\omega}^{\text{n}} \ll \sigma_{\omega}^{\text{s}}$  и  $j_{\omega}^{\text{n}} \ll j_{\omega}^{\text{s}}$  не выполняются, мала ( $\Delta T_1 \leq 0,0001 T_c$ ). Поэтому в дальнейшем будем считать, что температура не очень близка к  $T_c$  ( $T < T_c - \Delta T_1$ ), так что при расчёте линейного отклика можно пренебречь компонентой тока, обусловленной нормальными электронами.

Тогда пространственное распределение вектор-потенциала  $\mathbf{A}_{\omega}(x, y)$ , создаваемое сторонним током  $\mathbf{j}_{\omega}^{\text{ext}}$ , расположенными над тонкой сверхпроводящей плёнкой толщины  $d_0 \ll \lambda$ , удовлетворяет следующему уравнению:

$$-\Delta \mathbf{A}_{\omega}(x, y) + \lambda_{\text{eff}}^{-1} \mathbf{A}_{\omega}(x, y) \delta(x) = \mu_0 \mathbf{j}_{\omega}^{\text{ext}}(x, y), \quad (10)$$

где  $\lambda_{\text{eff}} = \lambda^2/d_0$ ,  $\text{div} \mathbf{A}_{\omega} = 0$ . Считая, что  $\mathbf{A}_{\omega} = A_{\omega}(x, y) \mathbf{z}_0$ , запишем уравнение (10) в скалярной форме:

$$-\Delta A_{\omega}(x, y) + \lambda_{\text{eff}}^{-1} A_{\omega}(x, y) \delta(x) = \mu_0 I_{\omega} \delta(x - a, y). \quad (11)$$

Для решения уравнения (11) относительно  $A_{\omega}(x, y)$  введём двумерные и одномерные фурье-компоненты (см., например, [23]):

$$A_{\omega}(k_x, k_y) = \int_{-\infty}^{+\infty} A_{\omega}(x, y) \exp(ik_x x + iyk_y) dx dy \quad (12)$$

и

$$A_{\omega}(k_y) = \int_{-\infty}^{+\infty} A_{\omega}(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi} = \int_{-\infty}^{+\infty} A_{\omega}(x, y) \delta(x) \exp(ik_y y) dx dy. \quad (13)$$

После преобразования Фурье получаем уравнение для фурье-образов:

$$(k_x^2 + k_y^2) A_{\omega}(k_x, k_y) + \lambda_{\text{eff}}^{-1} A_{\omega}(k_y) = \mu_0 I_{\omega} \exp(ik_y a). \quad (14)$$

Выражая отсюда  $A_{\omega}(k_x, k_y)$  и интегрируя по  $k_x$ , находим фурье-компоненту  $A_{\omega}(k_y)$  в сверхпроводящей плёнке:

$$A_{\omega}(k_y) = \mu_0 I_{\omega} \frac{\lambda_{\text{eff}} \exp(-|k_y|a)}{1 + 2|k_y| \lambda_{\text{eff}}}. \quad (15)$$

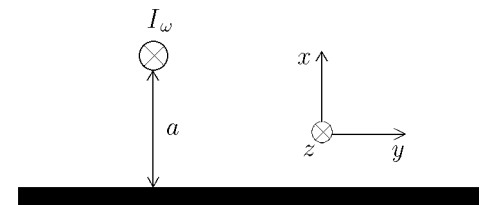


Рис. 3. Провод с СВЧ током  $I_{\omega}$  над поверхностью бесконечной сверхпроводящей плёнки

Поскольку в нашем случае справедливо соотношение  $a \gg \lambda_{\text{eff}}$ , выражение (15) может быть преобразовано к виду

$$A_{\omega}(k_y) = \mu_0 I_{\omega} \lambda_{\text{eff}} \exp(-|k_y|a). \quad (16)$$

После вычисления обратного преобразования Фурье находим распределение  $z$ -компонент векторного потенциала  $\mathbf{A}_{\omega}(y)$  и плотности сверхпроводящего тока  $\mathbf{j}_{\omega}^s$  в плёнке:

$$A_{\omega}(y) = -\frac{\mu_0 \lambda^2 I_{\omega} a}{\pi d_0 (a^2 + y^2)}, \quad (17)$$

$$j_{\omega}^s(y) = \frac{I_{\omega} a}{\pi d_0 (a^2 + y^2)}. \quad (18)$$

Заметим, что распределения (17) и (18) соответствуют случаю идеального экранирования магнитного поля источника. Область температур вблизи  $T_c$ , где приближение полной экранировки не работает ( $a \leq \lambda_{\text{eff}}$ ), весьма мала ( $\Delta T_2 \leq 0,001 T_c$ ), так что при расчёте нелинейного отклика сверхпроводника для температур, не слишком близких к  $T_c$  ( $T < T_c - \Delta T_2$ ), мы воспользуемся найденными выше распределениями.

### 2.3. Нелинейный отклик

Рассчитаем нелинейный СВЧ отклик тонкой сверхпроводящей плёнки. В общем случае нелинейность СВЧ отклика сверхпроводника может быть связана с зависимостью проводимостей  $\sigma_{\omega}^n$  и  $\sigma_{\omega}^s$  от напряжённости электрического поля  $E_{\omega}$ . Поскольку нелинейный отклик наблюдается только в сверхпроводящем состоянии и исчезает при переходе образца в нормальное состояние, мы полагаем, что этот отклик определяется в основном зависимостью  $\sigma_{\omega}^s = \sigma_{\omega}^s(E_{\omega})$ . Поэтому, придерживаясь феноменологического подхода, запишем нелинейную связь векторного потенциала  $\mathbf{A}$  с плотностью сверхпроводящего тока  $\mathbf{j}_s$  в приближении слабого сигнала ( $A \ll A_c$ ):

$$\mathbf{j}_s = -\frac{\mathbf{A}}{\mu_0 \lambda^2} \left(1 - \frac{A^2}{A_c^2}\right), \quad (19)$$

где  $A_c$  — феноменологический параметр, характеризующий величину критического тока для конкретного механизма нелинейности. Заметим, что такая феноменологическая связь может быть записана в приближении слабого сигнала, например, для нелинейности Гинзбурга—Ландау, джозефсоновской нелинейности, тепловой нелинейности, нелинейности, обусловленной движением вихрей, и т. д. Тогда, используя выражение (17) для векторного потенциала  $A_{\omega}(x, y)$ , полученное в первом приближении, и нелинейную связь (19), записываем уравнение для векторного потенциала на частоте третьей гармоники  $A_{3\omega}^{\text{nl}}(x, y)$ :

$$-\Delta A_{3\omega}^{\text{nl}}(x, y) + \lambda_{\text{eff}}^{-1} A_{3\omega}^{\text{nl}}(x, y) \delta(x) = \mu_0 j_{3\omega}^{\text{nl}}, \quad (20)$$

где

$$j_{3\omega}^{\text{nl}} = \frac{1}{4\mu_0 \lambda_{\text{eff}}} \frac{A_{\omega}^3}{A_c^2} \delta(x) \quad (21)$$

— ток, который для уравнения (20) может рассматриваться как сторонний. Для нахождения векторного потенциала на зонде  $A_{3\omega}^{\text{nl}}(a, 0)$  воспользуемся теоремой взаимности и выражениями

(17) и (7), сделав в них тривиальную замену частоты:  $\mathbf{A}_\omega \rightarrow \mathbf{A}_{3\omega}$  и  $\mathbf{j}_\omega^{\text{ext}} \rightarrow \mathbf{j}_{3\omega}^{\text{ext}}$ . Тогда теорема взаимности на частоте третьей гармоники запишется в виде

$$\int \mathbf{j}_{3\omega}^{\text{ext}} \mathbf{A}_{3\omega}^{\text{nl}} dV = \int \mathbf{j}_{3\omega}^{\text{nl}} \mathbf{A}_{3\omega} dV. \quad (22)$$

Здесь  $\mathbf{A}_{3\omega}$  — векторный потенциал, создаваемый сторонним током  $\mathbf{j}_{3\omega}^{\text{ext}}$ , а  $\mathbf{A}_{3\omega}^{\text{nl}}$  — векторный потенциал, создаваемый током  $\mathbf{j}_{3\omega}^{\text{nl}}$  (21), текущим по сверхпроводящей плёнке. После подстановки и вычисления интегралов получаем векторный потенциал на зонде:

$$A_{3\omega}^{\text{nl}}(a, 0) = \frac{5\mu_0^3 \lambda^6 I_\omega^3}{64\pi^3 d_0^3 a^3 A_c^2}. \quad (23)$$

Напряжение на зонде  $U_{3\omega}$ , обусловленное векторным потенциалом  $A_{3\omega}^{\text{nl}}$ , меняющимся с частотой  $3\omega$ , равно

$$U_{3\omega} = -\frac{\partial A_{3\omega}^{\text{nl}}}{\partial t} l. \quad (24)$$

Из соотношений (23) и (24) находим амплитуду напряжения на зонде на частоте третьей гармоники:

$$U_{3\omega} = \frac{15\omega\mu_0^3 \lambda^6 I_\omega^3 l}{64\pi^3 d_0^3 a^3 A_c^2}. \quad (25)$$

Вводя критический ток нелинейности

$$j_c = -\frac{A_c}{\mu_0 \lambda^2}, \quad (26)$$

выражение (25) можно записать в виде

$$U_{3\omega} = \frac{15\omega\mu_0 \lambda^2 I_\omega^3 l}{64\pi^3 d_0^3 a^3 j_c^2}. \quad (27)$$

Мощность, излучаемая в линию передачи на утроенной частоте, равна

$$P_{3\omega} = \frac{U_{3\omega}^2}{2Z_0}, \quad (28)$$

входная мощность на основной частоте с учётом соотношения (6) равна

$$P_\omega = \frac{I_\omega^2 Z_0}{8}. \quad (29)$$

Используя соотношения (28) и (29), окончательно получаем нелинейную связь мощности третьей гармоники с мощностью первой гармоники, рассчитанную в приближении слабого СВЧ поля:

$$P_{3\omega} = \frac{P_\omega^3}{P_c^2}, \quad (30)$$

где

$$P_c = \frac{4Z_0^2 \pi^3 d_0^3 a^3 j_c^2}{15\omega\mu_0 \lambda^2 l}. \quad (31)$$

Следует заметить, что несмотря на то, что расчёт был сделан для тонкой плёнки (т. е. в предположении  $d_0 \ll \lambda$ ), все основные выводы и соотношения (30), (31) справедливы по порядку

величины и для массивного сверхпроводника. Однако в случае массивного сверхпроводника при оценке мощности третьей гармоники необходимо сделать замену  $d_0$  на  $\lambda$  в формуле (31), соответствующую тому, что экранирующий ток сосредоточен в поверхностном слое толщины  $\lambda$ . При этом следует отметить, что в этом случае сигнал на частоте третьей гармоники будет меньше в  $(d_0/\lambda)^6$  раз по сравнению со случаем тонкой сверхпроводящей плёнки.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

#### 3.1. Характеристики образцов

В работе экспериментально исследовались плёнки, монокристаллы, поликристаллы YBCO и плёнки Nb. Плёнки YBCO с толщиной  $300 \div 1000$  Å были выращены методом магнетронного напыления на подложках из NdGaO<sub>3</sub> и LaAlO<sub>3</sub>. Поликристаллические образцы были выполнены в виде таблетки с диаметром 18 мм и толщиной 2 мм. Монокристаллы YBCO в форме пластины с размерами  $1 \times 2 \times 0,1$  мм были приготовлены в КФТИ РАН Е. Ф. Куковицким и С. Г. Львовым. Также были измерены плёнки Nb с толщиной  $100 \div 1000$  Å, выращенные на подложках из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и Si.

Температурная зависимость удельного сопротивления образцов  $\rho(T)$  измерялась стандартным четырёхзондовым методом. Критическая температура сверхпроводников  $T_c$  определялась как температура, при которой происходит падение удельного сопротивления  $\rho$  образца на два порядка по сравнению с удельным сопротивлением  $\rho_n$  в нормальном состоянии. Типичная критическая температура для плёнок, монокристаллов и поликристаллов YBCO составляет  $T_c = 86 \div 91$  К (рис. 4). Плёнки Nb имели критическую температуру  $T_c = 8 \div 9$  К (рис. 5).

Для определения температурной зависимости плотности тока пиннинга  $j_p(T)$  для плёнок YBCO (рис. 4) и Nb (рис. 5) в интервале температур  $4 \div 91$  К были проведены эксперименты по измерению остаточной намагниченности плёнки. После увеличения магнитного поля до значений  $B \geq 600$  Гс, обеспечивающих полное проникновение магнитного потока в плёнку, и последующего уменьшения его до нуля датчиком Холла определялось максимальное значение захваченного поля  $\max\{B_z(x, y)\}$ . Затем в рамках модели критического состояния  $j = j_p = \text{const}$  была проведена оценка средней по поверхности плёнки плотности тока пиннинга  $j_p$  по формуле [24]

$$j_p = \frac{c \max\{B_z\}}{2\pi d_0 \ln(L/R_H)}. \quad (32)$$

Здесь  $d_0$  — толщина плёнки,  $L$  — размер плёнки,  $R_H \approx 250$  мкм — параметр, характеризующий пространственное разрешение датчика Холла. Типичные значения плотности тока пиннинга  $j_p$  составляют  $8 \cdot 10^5$  А/см<sup>2</sup> для плёнок YBCO при  $T = 77$  К и  $3 \cdot 10^6$  А/см<sup>2</sup> для плёнок Nb при  $T = 4,2$  К. Поликристаллы YBCO имели плотность тока пиннинга  $j_p(T = 77 \text{ К}) \sim 10^3 \div 10^4$  А/см<sup>2</sup>.

Для плёнок YBCO также была измерена температурная зависимость эффективной плотности тока распаривания  $j_{\text{eff}}(T)$  (техника измерений приведена в работе [25]). Методика измерения  $j_{\text{eff}}$  основана на использовании в качестве источника магнитного поля малой ферромагнитной частицы (микромагнита). Эффективная плотность тока распаривания  $j_{\text{eff}}$  определялась на основе экспериментов по измерению поверхностного энергетического барьера Бина—Ливингстона тонких сверхпроводящих плёнок в интервале температур  $77 \div 91$  К. Для температуры  $T = 77$  К измеренное значение  $j_{\text{eff}}$  составило  $2,5 \cdot 10^6$  А/см<sup>2</sup> (см. рис. 4).



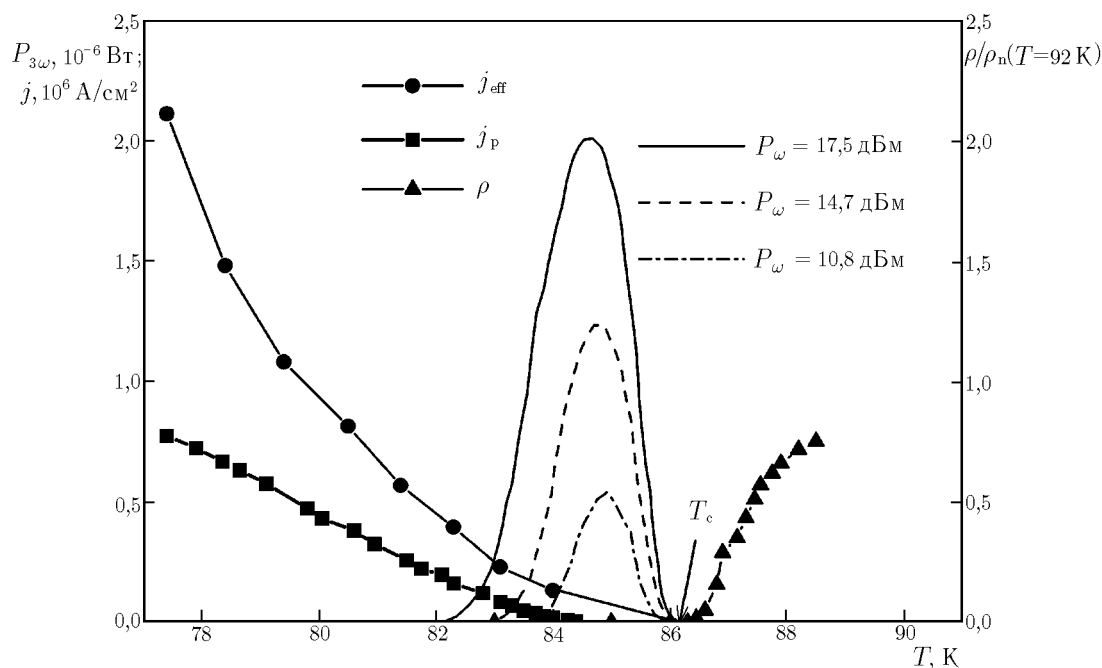


Рис. 4. Температурные зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$  при различных входной мощности  $P_{\omega}$ , плотности тока пиннинга  $j_p(T)$ , эффективной плотности тока распаривания  $j_{\text{eff}}(T)$  и удельного сопротивления  $\rho(T)$  для плёнки YBCO при температурах, близких к  $T_c$

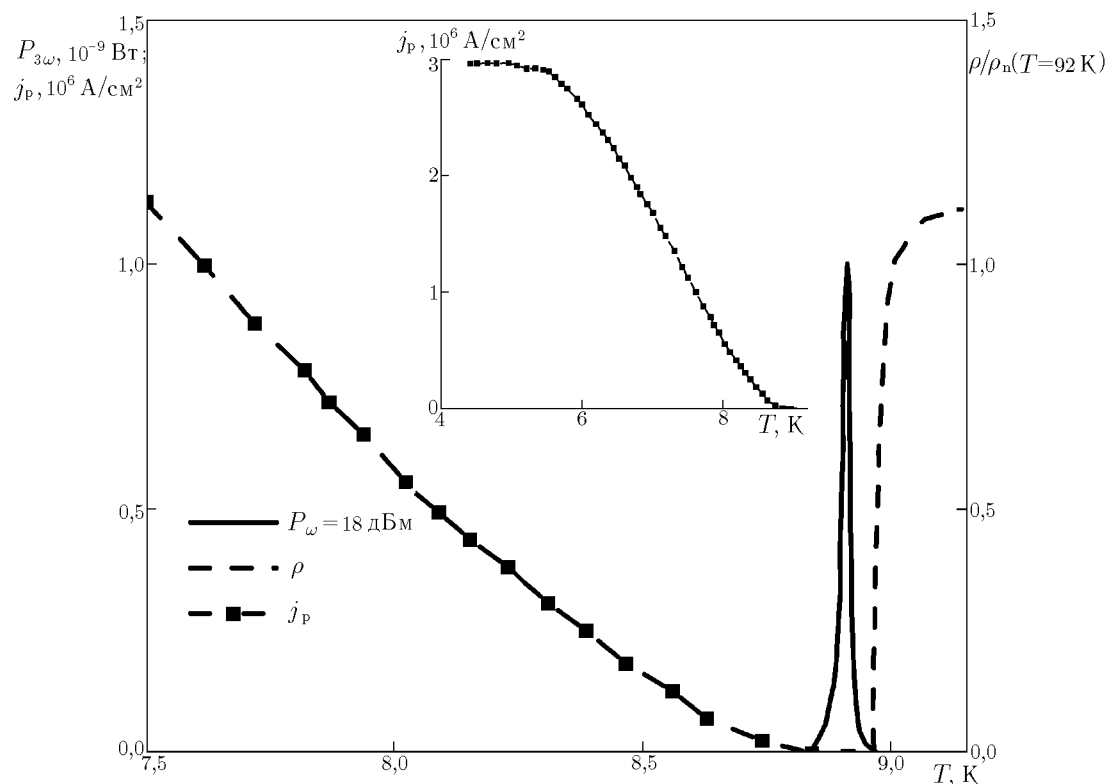


Рис. 5. Температурные зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$ , плотности тока пиннинга  $j_p$  и удельного сопротивления  $\rho$  для плёнки Nb при температурах, близких к  $T_c$ . На вставке показана температурная зависимость плотности тока пиннинга  $j_p$  в температурном интервале от 4 до 9 K

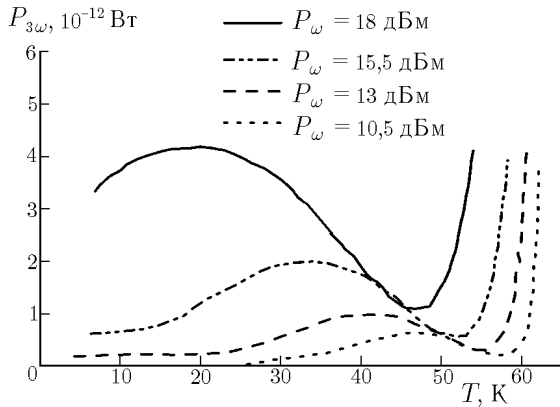


Рис. 6. Температурные зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$  при различной входной мощности  $P_{\omega}$  для плёнок YBCO при низких температурах

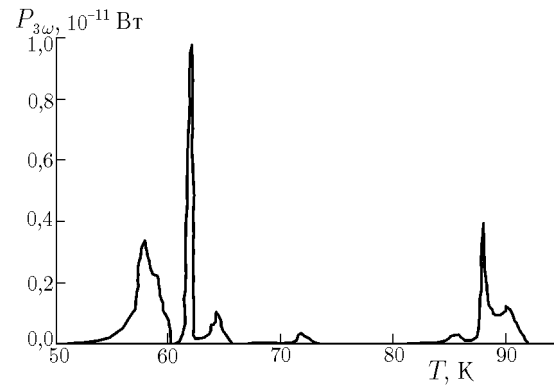


Рис. 7. Температурная зависимость мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$  для монокристалла YBCO при  $P_{\omega} = 18$  дБм

### 3.2. Температурная зависимость мощности третьей гармоники

На рис. 4 представлены типичные температурные зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$  при различной входной мощности  $P_{\omega}$  для плёнки YBCO в области температур, близких к  $T_c$ . Температурная зависимость нелинейного отклика демонстрирует характерный довольно узкий пик нелинейности шириной порядка 2-3 К при температуре вблизи 85 К. При повышении

мощности падающей волны  $P_{\omega}$  максимум температурной зависимости нелинейного отклика  $P_{3\omega}(T)$  увеличивается и монотонно смещается в сторону меньших температур. В то же время температура исчезновения нелинейного отклика (справа от пика нелинейности) практически не зависит от мощности первой гармоники  $P_{\omega}$ . На рис. 4 также представлены температурные зависимости плотности тока пиннинга  $j_p(T)$ , эффективной плотности тока распаривания  $j_{\text{eff}}(T)$  и удельного сопротивления  $\rho(T)$ . Сравнивая зависимости  $P_{3\omega}(T)$  и  $\rho(T)$ , можно заметить, что температура исчезновения нелинейного отклика равна температуре перехода сверхпроводника в сверхпроводящее состояние  $T_c$  (определённой нами выше по результатам резистивных измерений). Кроме того, для плёнок YBCO наблюдается корреляция между зависимостями  $P_{3\omega}(T)$  и  $j_p(T)$ :

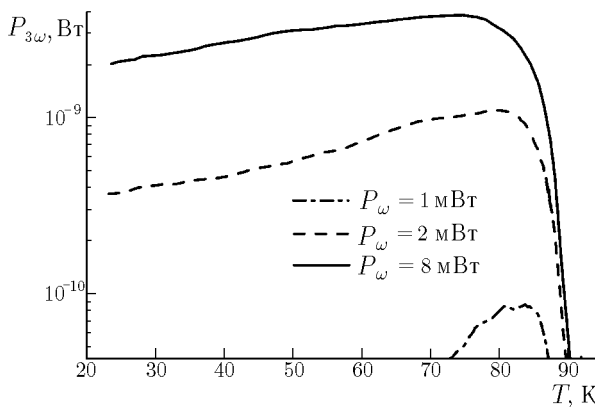


Рис. 8. Температурные зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$  при различной входной мощности  $P_{\omega}$  для поликристалла YBCO

температура, при которой достигается максимум нелинейности, соответствует температуре исчезновения тока пиннинга.

В области низких температур (при температурах, не слишком близких к  $T_c$ ) некоторые плёнки YBCO демонстрируют довольно широкий максимум нелинейности (рис. 6), причём величина низкотемпературного пика зависимости  $P_{3\omega}(T)$  на несколько порядков меньше величины высокотемпературного пика (вблизи  $T_c$ ). Положение низкотемпературного максимума сильно зависит

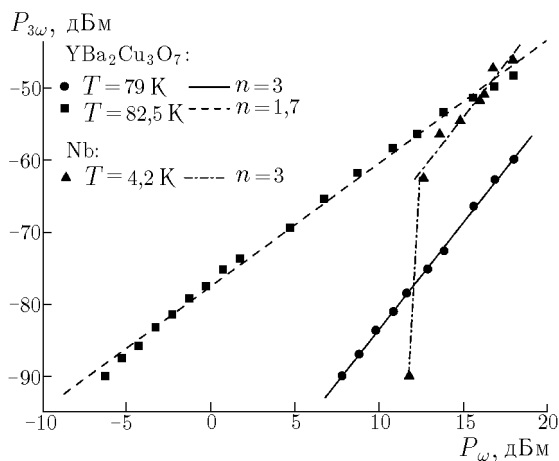


Рис. 9. Зависимости  $P_{3\omega}(P_{\omega})$  для плёнок YBCO и Nb при разной температуре и их аппроксимация степенным законом  $P_{3\omega} \propto P_{\omega}^n$

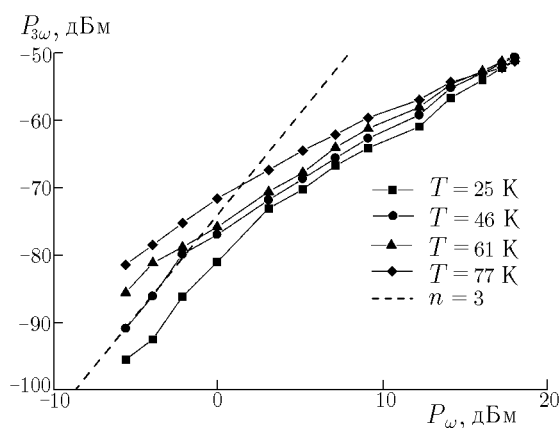


Рис. 10. Зависимость  $P_{3\omega}(P_{\omega})$  для поликристалла YBCO при различной температуре. Пунктирной линией показана зависимость  $P_{3\omega} \propto P_{\omega}^3$

от мощности сигнала  $P_{\omega}$ . При минимальной мощности  $P_{\omega} < 10,5$  дБм максимум расположен при  $T \approx 50$  К, а при максимальной мощности  $P_{\omega} = 18$  дБм максимум смещается к  $T = 20$  К.

Температурная зависимость  $P_{3\omega}(T)$  для монокристалла YBCO (рис. 7) демонстрирует несколько пиков нелинейности, лежащих в двух температурных интервалах: вблизи  $T_c$  и в области температур  $55 \div 75$  К.

В поликристаллических образцах, в отличие от монокристаллов и плёнок YBCO, наблюдается довольно широкий максимум нелинейности вблизи  $T_c$ , который при увеличении  $P_{\omega}$  расширяется вплоть до гелиевых температур (рис. 8).

На рис. 5 показаны типичные температурные зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$ , плотности тока пиннинга  $j_p(T)$  и удельного сопротивления  $\rho(T)$  для сверхпроводящих плёнок Nb. В данных образцах мы наблюдали узкий пик нелинейности шириной порядка 0,1 К. Как видно из рис. 5, в плёнках Nb нелинейный отклик появляется (как и в случае плёнок YBCO) при переходе образца в сверхпроводящее состояние, а ток пиннинга  $j_p$  исчезает при температурах, меньших температуры, соответствующей максимуму нелинейного отклика.

### 3.3. Зависимость мощности третьей гармоники от входной мощности

На рис. 9 и 10 представлены зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}$  от входной мощности  $P_{\omega}$  для плёнок YBCO, плёнок Nb и поликристаллов YBCO, построенные в двойном логарифмическом масштабе. Экспериментальные данные хорошо аппроксимируются степенным законом  $P_{3\omega} \propto P_{\omega}^n$ .

В области низких и промежуточных температур для плёнок и поликристаллов YBCO  $n \approx 3$ , а при увеличении температуры или входной мощности наблюдается уменьшение показателя до  $n \leq 2$  (рис. 9 и 10). Такое же отклонение зависимости  $P_{3\omega}(P_{\omega})$  от кубической в сильных СВЧ полях наблюдалось, например, в работе [6] для плёнок YBCO.

Для некоторых тонких плёнок Nb ( $d_0 < 300$  Å), выращенных на подложках из  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , при  $T = 4,2$  К удалось наблюдать ярко выраженный порог по мощности (рис. 9). При дальнейшем увеличении входной мощности  $P_{\omega}$  показатель  $n \approx 3$ .

### 3.4. Зависимость мощности третьей гармоники от внешнего постоянного магнитного поля

Рассмотрим влияние внешнего магнитного поля  $H_{dc}$ , перпендикулярного поверхности сверхпроводника, на нелинейный отклик плёнки YBCO. На рис. 11 представлены зависимости  $P_{3\omega}$  от внешнего магнитного поля при  $T = 83,5$  К и  $T = 77$  К для плёнок YBCO. Поведение зависимости  $P_{3\omega}(H_{dc})$  качественно различается в области азотных температур и при температурах, близких к  $T_c$ . При  $T = 77$  К наблюдается довольно сильный гистерезис, и увеличение поля приводит к резкому возрастанию мощности третьей гармоники в магнитном поле  $H_{dc} \sim 10$  Гс. В области температур, близких к  $T_c$ , необратимость зависимости  $P_{3\omega}(H_{dc})$  исчезает, и пик нелинейности в  $P_{3\omega}(T)$  подавляется постоянным магнитным полем. Кроме того, при максимальной мощности входного сигнала наблюдается максимум в зависимости  $P_{3\omega}(H_{dc})$  (см. рис. 11), связанный с небольшим сдвигом пика нелинейности в  $P_{3\omega}(T)$  в сторону меньших температур (магнитное поле  $H_{dc} \sim 100$  Гс сдвигает высокотемпературный пик на величину порядка 0,1 К).

В поликристаллических образцах YBCO наблюдалось аналогичное поведение зависимости  $P_{3\omega}(H_{dc})$ . Однако в поликристаллах YBCO, в отличие от плёнок YBCO, наблюдалось более сильное смещение температуры максимума нелинейности в область низких температур при увеличении  $H_{dc}$  (рис. 12).

Влияние внешнего магнитного поля на нелинейный отклик в монокристаллах пока детально не исследовано. Однако наши предварительные результаты указывают на то, что при включении постоянного магнитного поля сложная структура низкотемпературных пиков в монокристаллах изменяется. В частности, некоторые из максимумов полностью подавляются даже слабым магнитным полем  $H_{dc} \leq 10$  Гс, а другие уменьшаются незначительно. По нашему мнению, вопрос о поведении этих пиков во внешнем магнитном поле очень важен для выяснения природы нелинейного отклика сверхпроводников и требует дальнейшего исследования.

На рис. 13 показана температурная зависимость нелинейного отклика для плёнок Nb при различном магнитном поле  $H_{dc}$ . Поведение нелинейного отклика во внешнем постоянном магнитном поле в плёнках Nb сильно отличается от поведения зависимости  $P_{3\omega}(H_{dc})$  в плёнках YBCO. Во-первых, в слабых магнитных полях  $H_{dc} < 50$  Гс нелинейный отклик вблизи  $T_c$  сначала возрастает, а потом сильно подавляется магнитным полем порядка 450 Гс. Во-вторых, в сильных магнитных полях появляется второй максимум нелинейности в зависимости  $P_{3\omega}(T)$ , который увеличивается по амплитуде при увеличении  $H_{dc}$ . При этом следует отметить, что эти максимумы нелинейного отклика во внешнем магнитном поле существуют при температурах, где отлична от нуля плотность тока пиннинга  $j_p$  (см. рис. 5 и 13). Наконец, увеличение внешнего магнитного поля приводит к сдвигу зависимости  $P_{3\omega}(T)$  в область меньших температур, который коррелирует со сдвигом температурной зависимости удельного сопротивления  $\rho(T)$  (рис. 13).

### 3.5. Пространственное распределение $P_{3\omega}(x, y)$ для плёнки YBCO

Разработанный локальный метод исследования нелинейности позволил определить пространственное распределение мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(x, y)$  для плёнки YBCO при различных температурах ниже  $T_c$ . В данных экспериментах мы использовали систему позиционирования, которая позволяла проводить сканирование с шагом 125 мкм в плоскости плёнки  $(x, y)$  при фиксированной высоте зонда  $a$  над её поверхностью. Как было отмечено выше, температура исчезновения нелинейного отклика в плёнке высокотемпературного сверхпроводника (ВТСП) соответствует критической температуре  $T_c$  (определённой нами в разделе 3.1; см. рис. 4). Поэтому, проводя сканирование пространственного распределения нелинейного отклика плёнки YBCO

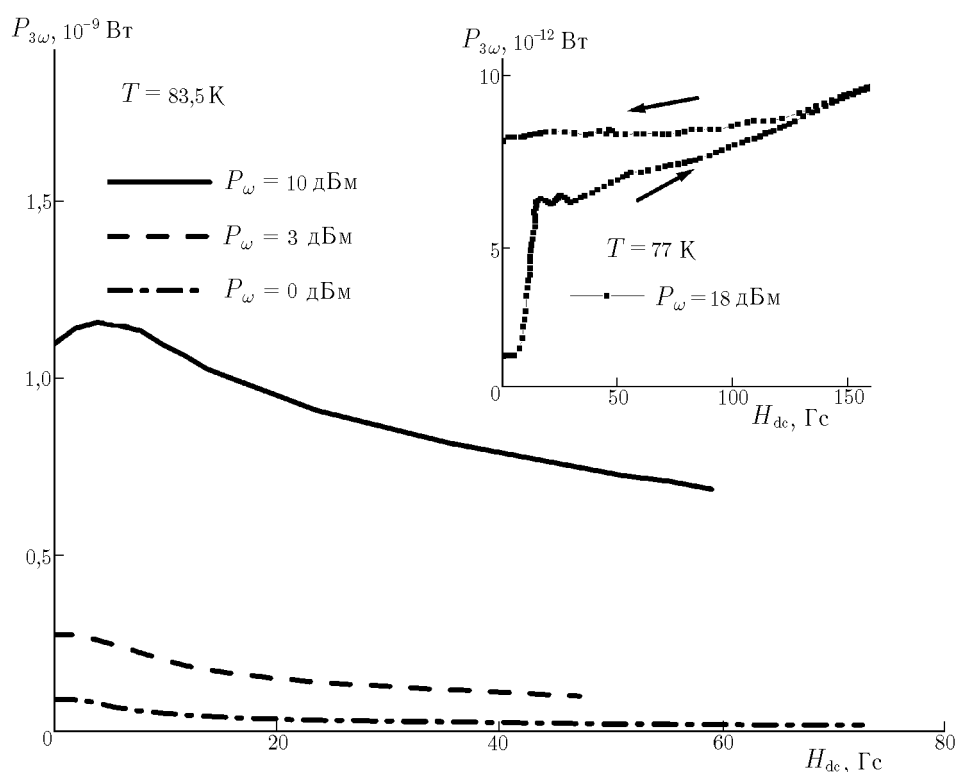


Рис. 11. Зависимость мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}$  от внешнего постоянного магнитного поля  $H_{dc}$  для плёнок YBCO при  $T = 83,5$  К (на левом склоне пика нелинейности). На вставке показана зависимость  $P_{3\omega}(H_{dc})$  при  $T = 77$  К

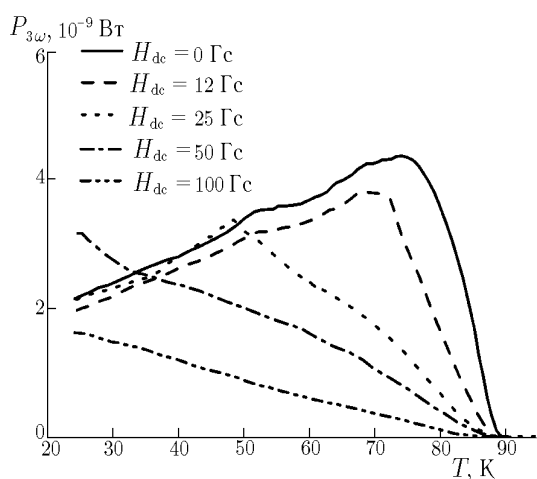


Рис. 12. Температурные зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$  при различных внешнем постоянном магнитном поле  $H_{dc}$  для поликристаллов YBCO

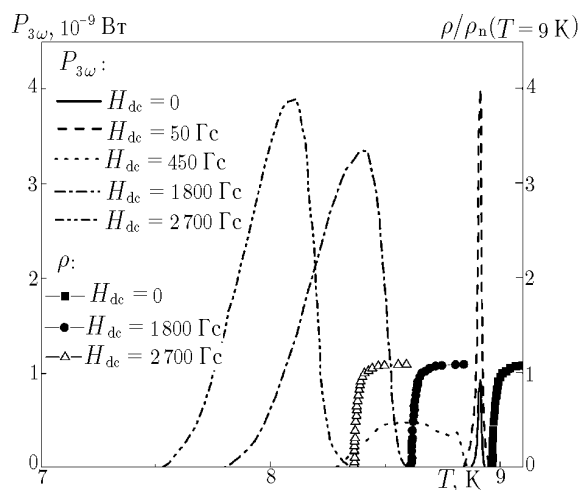


Рис. 13. Температурные зависимости мощности третьей гармоники  $P_{3\omega}(T)$  и удельного сопротивления  $\rho(T)$  при различных внешнем постоянном магнитном поле  $H_{dc}$  для плёнки Nb

при различных температурах, представляется возможным бесконтактно определить распределение критической температуры  $T_c$  в образце. На рис. 14 представлены результаты сканирования плёнки YBCO при фиксированной высоте зонда  $a = 200$  мкм при  $T = 88$  К (рис. 14а) и  $T = 90$  К

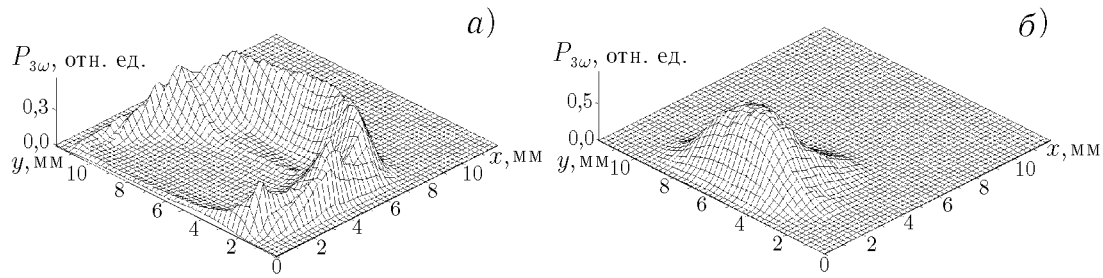


Рис. 14. Пространственное распределение нелинейного СВЧ отклика плёнки YBCO при  $T = 88$  К (а) и  $T = 90$  К (б). Проволочка зонда расположена параллельно оси  $x$

(рис. 14б). Рис. 14а, б демонстрируют неоднородное распределение нелинейного отклика на поверхности плёнки, которое мы связываем с неоднородным распределением критической температуры  $T_c$  в сверхпроводящем образце. Действительно, область плёнки YBCO, в которой при  $T = 90$  К нелинейность ещё наблюдается, а при  $T = 88$  К исчезает, имеет более высокую критическую температуру по сравнению с областью плёнки, где нелинейный отклик наблюдается только при  $T = 88$  К. Также следует отметить, что при приближении зонда к границе образца наблюдается увеличение мощности третьей гармоники (рис. 14а), связанное с возрастанием плотности экранирующих токов. Такое усиление тока зависит от ориентации проволочки (зонда) по отношению к границе плёнки. В частности, наибольшая плотность токов и, соответственно, наибольший нелинейный сигнал возникают в случае, когда она параллельна краю плёнки.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

В этом разделе мы систематизируем основные экспериментальные данные и обсудим возможную природу нелинейности YBCO и Nb. Поскольку природа нелинейного СВЧ отклика как в ВТСП, так и в низкотемпературных сверхпроводниках до конца не ясна, ниже мы обсудим наши экспериментальные результаты в рамках двухжидкостной модели сверхпроводника с феноменологической нелинейной связью  $j_s(A)$ , определяемой выражением (19).

Эксперименты показали, что температурная зависимость нелинейного отклика сверхпроводников демонстрирует характерный пик нелинейности вблизи  $T_c$ , причём при увеличении входной мощности или при приближении температуры к  $T_c$  наблюдается насыщение зависимости мощности третьей гармоники от мощности первой гармоники  $P_{3\omega}(P_\omega)$ . В общем случае пики нелинейности вблизи  $T_c$  (см. рис. 4–8) и насыщение зависимости  $P_{3\omega}(P_\omega)$  (см. рис. 9 и 10) могут быть объяснены в рамках двухжидкостной модели сверхпроводника (8), (9). Действительно, полная плотность тока  $j$ , текущего по сверхпроводнику, есть сумма плотности сверхпроводящего тока  $j_s$  и плотности нормального тока  $j_n = \sigma_n E$ . При этом плотность сверхпроводящего тока  $j_s$  описывается нелинейной феноменологической связью  $j_s(A)$ , которая справедлива для многих моделей нелинейности в пределе слабого сигнала ( $A_\omega \ll A_c$ ). Параметр  $A_c$  характеризует значение критического тока нелинейности  $j_c$ , которое определяется конкретным механизмом нелинейности. В частности, связь (19) соответствует теории Гинзбурга—Ландау, если плотность критического тока нелинейности  $j_c$  в выражении (26) равна критической плотности тока распаривания Гинзбурга—Ландау  $j_{GL}$ . Аналогичным образом следует ожидать, что и для других моделей нелинейного отклика зависимости (19), (21) тоже будут выполняться, если под соответствующими величинами ( $\lambda$ ,  $j_c$ ) подразумевать их эффективные, средние значения (усреднённые плотности тока, эффективные глубины проникновения магнитного поля и т. д.; см., например, [26]). Поэтому в

дальнейшем мы будем полагать, что для нелинейности, связанной с подавлением модуля параметра порядка,  $j_c \approx j_{GL}$ ; для нелинейности, обусловленной наличием джозефсоновских связей,  $j_c \approx j_J$ ; для нелинейности, связанной с негармоническими колебаниями в непараболическом потенциале пиннинга,  $j_c \approx j_p$  и т. п.

При температурах не слишком близких к  $T_c$ , или при малом уровне входной мощности (т. е. в области применимости приближения слабого сигнала) теоретический расчёт (раздел 2.3) согласуется с экспериментальными данными. Действительно, при этих условиях мощность третьей гармоники  $P_{3\omega}$  увеличивается с ростом температуры и наблюдается кубическая зависимость мощности третьей гармоники от мощности первой гармоники:  $P_{3\omega} \propto P_\omega^3$  (см. рис. 9, 10).

В области температур, близких к  $T_c$ , или при высоком уровне входной мощности, т. е. в области сильного микроволнового поля ( $A_\omega \sim A_c$ ), разложение (19) не справедливо, т. к. полный ток  $j$ , текущий по сверхпроводящей плёнке, становится порядка или больше критического тока нелинейности  $j_c$ . В этом случае полный ток уже не может переноситься только сверхпроводящим током  $j_s$ , и нормальная компонента  $j_n = \sigma_n E$  становится существенной и требует корректного учёта. Следовательно, в сильном микроволновом поле будет наблюдаться ограничение сверхпроводящего тока  $j_s$ , текущего по плёнке, которое приводит к уменьшению нелинейного отклика при приближении температуры к  $T_c$  или насыщению зависимости  $P_{3\omega}(P_\omega)$ .

#### 4.1. Нелинейный СВЧ отклик YBCO

Природа нелинейности в YBCO исследовалась в ряде экспериментальных и теоретических работ, в которых для объяснения нелинейных свойств высокотемпературных сверхпроводников предлагались различные механизмы. Авторы [6, 7] связывают механизм излучения второй и третьей гармоник в плёнках и монокристаллах YBCO с нелинейностью Гинзбурга—Ландау. В работе [16] для интерпретации результатов по исследованию генерации третьей гармоники в монокристалле YBCO привлекалась двухжидкостная модель сверхпроводника с концентрациями сверхпроводящих и нормальных электронов, специальным образом зависящими от амплитуды волны. О существовании минимума в температурной зависимости амплитуды напряжённости электрического поля на утроенной частоте  $E_{3\omega}(T)$  при  $T \sim 40$  К для плёнок YBCO сообщается в работе [15]. Медленный рост  $E_{3\omega}(T)$  при низких температурах авторы объясняют наличием слабых связей в образцах, высокотемпературный пик — рождением вихрей вблизи  $T_c$  на краях образца и их вкладом в нелинейный отклик. Ниже мы обсудим применимость основных моделей нелинейности к нашим экспериментальным результатам, полученным для YBCO.

Для удобства анализа экспериментальных данных и особенностей нелинейного отклика плёнок, монокристаллов и поликристаллов YBCO выделим три температурных интервала: низких ( $T \leq 2T_c/3$ ), промежуточных ( $2T_c/3 \leq T \leq 9T_c/10$ ) и близких к  $T_c$  ( $T \geq 9T_c/10$ ) температур.

##### 4.1.1. Нелинейный СВЧ отклик плёнок YBCO

**а) Промежуточные температуры.** Начнём с анализа нелинейных свойств плёнок YBCO при промежуточных температурах. В этом температурном диапазоне при  $T = 79$  К для плёнки YBCO в эксперименте наблюдается кубическая зависимость мощности третьей гармоники от мощности первой гармоники:  $P_{3\omega} \propto P_\omega^3$  (см. рис. 9). Такое поведение согласуется с теоретическим расчётом (30), (31), справедливым в приближении слабого сигнала ( $A \ll A_c$ ). Оценим из экспериментальной зависимости  $P_{3\omega}(P_\omega)$  критическую плотность тока  $j_c$ , который, как было отмечено выше, характеризует конкретный механизм нелинейности. Подставляя в формулы (30), (31) типичные параметры плёнок:  $d_0 = 1000$  Å,  $\lambda = 2000$  Å, и полагая  $a = 35$  мкм,

$l = 2$  мм, получаем характерную критическую плотность тока нелинейности для плёнки YBCO:  $j_c(T = 79 \text{ K}) \approx 3 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$ . Сравним полученное значение с плотностью токов, характеризующих различные механизмы нелинейности.

Одним из возможных механизмов, который может давать вклад в нелинейный отклик плёнок YBCO в этой области температур, является тепловая нелинейность. Как известно [13], природа тепловой нелинейности обусловлена диссипацией энергии и нагревом образца из-за наличия нормальных электронов в сверхпроводнике. В случае слабого микроволнового поля из уравнения теплового баланса [12] следует, что эти изменения температуры  $\Delta T$  пропорциональны диссипируемой в образце мощности, т. е.  $\Delta T \propto E^2$ . В то же время изменения  $\Delta T$  ведут к изменению концентрации сверхпроводящих электронов  $\Delta n_s$  и, согласно выражению (9), к кубичной зависимости  $j_s(A)$  ( $A \ll A_c$ ). Поэтому, действуя аналогично работе [12], можно оценить характерную плотность критического тока тепловой нелинейности  $j_t$ . По нашим оценкам значение  $j_t$  для типичных параметров плёнок YBCO при температуре  $T \approx 80 \text{ K}$  составляет  $10^8 \div 10^9 \text{ A/cm}^2$ , что значительно больше величины  $j_c(T = 79 \text{ K})$ , полученной в эксперименте. Таким образом, мы полагаем, что в области промежуточных температур этот механизм нелинейности не даёт существенного вклада в наблюдаемый нелинейный отклик.

Сравним значение  $j_c(T = 79 \text{ K})$  с критическим током распаривания Гинзбурга—Ландау  $j_{GL}$ . Для плёнки YBCO теоретический расчёт предсказывает  $j_{GL}(T = 79 \text{ K}) \approx 10^7 \div 10^8 \text{ A/cm}^2$  [21], что на порядок превышает критическую плотность тока  $j_c(T = 79 \text{ K})$ . Следовательно, в области промежуточных температур, по нашему мнению, в эксперименте не наблюдается и нелинейность Гинзбурга—Ландау.

В то же время на рис. 4 приведены данные по измерению эффективной плотности тока распаривания  $j_{eff}$  (см. раздел 3.1) на тех же плёнках YBCO, на которых производились измерения нелинейного отклика. Температурная зависимость  $j_{eff}(T)$  получена из экспериментов по измерению локального энергетического барьера для вхождения вихрей в тонкие плёнки YBCO. Столь низкая эффективная плотность тока распаривания  $j_{eff}$  в исследуемых образцах  $j_{eff}/j_{GL} \sim 10^{-2} \div 10^{-1}$ , где  $j_{GL}$  — плотность тока распаривания в идеальном монокристаллическом образце, и, соответственно, аномально низкий барьер для рождения вихрей свидетельствуют о наличии в образце слабых джозефсоновских связей между сверхпроводящими гранулами (см. также [25]). В то же время полученная характерная плотность тока нелинейности  $j_c(T = 79 \text{ K})$  по порядку величины совпадает с эффективной плотностью тока распаривания  $j_{eff}(T = 79 \text{ K}) \approx 1,5 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$  и с критическим током джозефсоновской среды  $j_J(T = 79 \text{ K}) \sim 10^6 \text{ A/cm}^2$  в плёнках YBCO, полученным из микроволновых измерений [1]. Следовательно, нелинейный отклик в плёнках YBCO может быть связан с джозефсоновской нелинейностью.

Кроме вышеперечисленных механизмов нелинейности, в области промежуточных температур также может быть существенной вихревая нелинейность. Однако, поскольку плотность экранирующих токов, текущих по сверхпроводящей плёнке,  $j_\omega^s(T = 79 \text{ K}) \leq 10^6 \text{ A/cm}^2$  меньше  $j_{eff}(T = 79 \text{ K})$ , в области промежуточных температур в плёнке YBCO не проникают вихри, созданные СВЧ полем зонда. Поэтому при отсутствии магнитного поля такой механизм нелинейного отклика не реализуется из-за отсутствия вихрей, созданных СВЧ полем зонда.

Таким образом, мы полагаем, что нелинейный отклик в плёнке YBCO в области промежуточных температур при отсутствии внешнего постоянного магнитного поля  $H_{dc}$ , по-видимому, определяется в основном джозефсоновской нелинейностью.

При включении внешнего постоянного магнитного поля  $H_{dc}$  начинается проникновение вихрей в сверхпроводник, и плёнки YBCO демонстрируют вихревой характер нелинейности (рис. 11). Однако в области внешнего магнитного поля  $0 \leq H_{dc} \leq 10 \text{ Гс}$  нелинейный отклик не зависит от  $H_{dc}$ . Это может быть связано с тем, что вихри, созданные постоянным магнитным полем, ещё



не достигают зонда, и дополнительного вклада в нелинейность не наблюдается. При дальнейшем увеличении  $H_{dc}$  мощность третьей гармоники резко возрастает, что свидетельствует о наличии вихревого вклада в нелинейном отклике. Кроме того, при выключении магнитного поля плёнки YBCO демонстрируют сильный гистерезис  $P_{3\omega}(H_{dc})$ , который уменьшается по мере приближения температуры к  $T_c$ . Мы считаем, что исчезновение гистерезиса в зависимости  $P_{3\omega}(H_{dc})$  обусловлено уменьшением тока пиннинга  $j_p$  при приближении температуры к  $T_c$  (рис. 4).

Таким образом, во внешнем постоянном магнитном поле при температурах, при которых плотность тока пиннинга отлична от нуля, ясно прослеживается нелинейный отклик плёнок YBCO, обусловленный движением вихрей, созданных внешним магнитным полем.

**б) Высокие температуры (близкие к  $T_c$ ).** При высоких температурах кроме внешнего магнитного поля сам СВЧ зонд может быть источником вихрей. Однако, поскольку СВЧ поле локализовано на масштабах порядка размеров зонда, высокочастотное магнитное поле на границе плёнки оказывается недостаточным для проникновения вихрей с краёв образца. Условием проникновения вихрей в тонкую плёнку в данной геометрии является достижение плотностью экранирующих токов  $j_s$  некоторого критического значения  $j^*$ , по порядку величины равного плотности тока распаривания Гинзбурга—Ландау  $j_{GL}$  для монокристаллических образцов или критическому джозефсоновскому току  $j_J$  для джозефсоновской среды. При увеличении температуры критическая плотность тока  $j^*$ , необходимая для создания вихревого состояния в исследуемых образцах, уменьшается. При некоторой температуре  $T^*$  плотность экранирующих токов  $j_s^s$ , текущих в сверхпроводящей плёнке, станет равна  $j^*$ . Эта температура  $T^*$ , конечно, определяется свойствами сверхпроводящего состояния. Например, для монокристаллических тонких плёнок температуру  $T^*$  можно оценить из температурной зависимости  $j_{GL}(T)$  [21]. При максимальной мощности сигнала  $P_\omega = 20$  дБм плотность экранирующих токов  $j_s^s$  равна  $10^6$  А/см<sup>2</sup>, и температура  $T^*$  лежит достаточно близко к  $T_c = 86,4$  К:  $T^* \geq 0,993T_c = 85,8$  К. В случае плёнок YBCO, исследованных нами в эксперименте, при максимальной мощности  $P_\omega$  температура  $T^*$  составляет величину порядка 80,1 К (рис. 4). Итак, мы полагаем, что в температурном интервале от  $T^*$  до  $T_c$  СВЧ зонд может являться источником вихрей в плёнке YBCO, которые дают вклад в полный нелинейный отклик. Указанием на вихревой характер нелинейности вблизи  $T_c$  в отсутствие внешнего магнитного поля может служить экспериментально наблюдаемая корреляция температуры максимума нелинейности с температурой исчезновения тока пиннинга  $j_p$  (рис. 4).

В области низких температур некоторые плёнки YBCO демонстрируют низкотемпературный пик нелинейности (рис. 6). Поскольку аналогичные особенности температурной зависимости нелинейного отклика наблюдались также и в монокристаллах YBCO, нелинейные свойства плёнок YBCO при низких температурах мы рассмотрим в следующем разделе.

#### 4.1.2. Нелинейный СВЧ отклик монокристаллов YBCO

Температурная зависимость нелинейного отклика монокристаллов YBCO демонстрирует несколько низкотемпературных пиков нелинейности, расположенных вблизи 60 К, и серию пиков вблизи  $T_c$  (рис. 7). В некоторых плёнках YBCO также кроме высокотемпературного пика нелинейности наблюдается низкотемпературный пик (рис. 6). Наличие нескольких пиков нелинейности в монокристаллах YBCO связано, по-видимому, с наличием нескольких сверхпроводящих фаз, имеющих разную критическую температуру  $T_c$ . Известно (см., например, [22]), что критическая температура монокристаллов  $YBa_2Cu_3O_x$  зависит от содержания кислорода  $x$  и стехиометрического состава соединения, при этом возможные критические температуры близки к температурам пиков, наблюдавшихся нами в эксперименте (рис. 7). В то же время существование этих максимумов нелинейности в области температур порядка 60 К и при температурах, близких к  $T_c$ , по

нашему мнению, может быть связано с наличием двух устойчивых модификаций орторомбической фазы монокристалла  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ , имеющих различное содержание кислорода  $x$  [22].

Исходя из этих данных, мы связываем наличие в монокристаллах и некоторых плёнках YBCO низкотемпературных пиков нелинейности с существованием низкотемпературных фаз в высокотемпературных сверхпроводниках YBCO. При этом следует отметить, что температурная зависимость  $P_{3\omega}(T)$  для низкотемпературных пиков нелинейности, как и для пика нелинейности вблизи  $T_c$ , может быть объяснена в рамках двухжидкостной модели сверхпроводника с феноменологической нелинейной связью (19) для всех обсуждаемых в настоящей работе моделей нелинейности.

#### 4.1.3. Нелинейный СВЧ отклик поликристаллов YBCO

Температурная зависимость нелинейного отклика  $P_{3\omega}(T)$  в поликристаллических образцах YBCO отличается от аналогичной зависимости для плёнок и монокристаллов YBCO. Главное отличие состоит в том, что зависимость  $P_{3\omega}(T)$  для поликристаллов YBCO имеет один широкий максимум (рис. 8), который при увеличении входной мощности  $P_\omega$  расширяется вплоть до низких температур. В области низких температур в керамических образцах YBCO наблюдается кубическая зависимость  $P_{3\omega}(P_\omega)$ , и, соответственно, справедливо приближение слабого сигнала. Оценим аналогично разделу 4.1.1.а критический ток нелинейности  $j_c$  при  $T = 46$  К для поликристаллов YBCO, используя рассчитанную зависимость  $P_{3\omega}(P_\omega)$  (30), (31) и экспериментальные данные, представленные на рис. 10. Полагая  $\lambda = 2000$  Å,  $a = 25$  мкм,  $l = 2$  мм и считая, что  $d_0 \sim \lambda$ , получаем  $j_c \approx 10^4 \div 10^5$  А/см<sup>2</sup>, что соответствует данным по критическому току джозефсоновской среды  $j_J$  в поликристаллах [17]. Следовательно, в поликристаллах YBCO при низких температурах нелинейный отклик может быть связан с джозефсоновской нелинейностью.

#### 4.2. Нелинейный СВЧ отклик плёнок Nb

В отсутствие внешнего магнитного поля в некоторых тонких плёнках Nb, в отличие от плёнок YBCO, при температуре  $T = 4,2$  К наблюдается порог в нелинейном отклике по мощности первой гармоники. Мы полагаем, что данный порог по мощности первой гармоники при гелиевых температурах связан с рождением вихрей СВЧ полем зонда. Оценим критическую плотность тока  $j^*$ , при которой начинается проникновение вихрей в плёнки Nb. Для пороговой мощности  $P_\omega^0 = 12$  дБм, наблюдавшейся нами в эксперименте, критическая плотность тока  $j^* \sim 1,5 \cdot 10^6$  А/см<sup>2</sup>. Полученное значение  $j^*$  как минимум на два порядка меньше тока распаривания Гинзбурга—Ландау в чистом Nb:  $j_{GL}(T = 4,2 \text{ К}) \approx 1,5 \cdot 10^8$  А/см<sup>2</sup>. Это позволяет сделать вывод, что нелинейный отклик в плёнках Nb не связан с существенным подавлением модуля параметра порядка в сверхпроводнике. По нашему мнению, заниженное значение  $j^*$  в плёнках Nb может быть связано с наличием джозефсоновских связей между кристаллитами и дефектов, которые приводят к уменьшению критической плотности тока проникновения вихрей до  $j^* \approx 1,1 \cdot 10^6$  А/см<sup>2</sup> при  $T = 4,2$  К [27]. Таким образом, нелинейность в плёнках Nb при гелиевых температурах при отсутствии постоянного магнитного поля определяется, по-видимому, движением вихрей, созданных СВЧ полем зонда, в областях с подавленной сверхпроводимостью.

Эксперименты показали, что нелинейный микроволновой отклик плёнок Nb очень чувствителен к внешнему перпендикулярному поверхности сверхпроводника постоянному магнитному полю  $H_{dc}$  (рис. 13). При включении  $H_{dc}$  наблюдалось сложное поведение температурной зависимости  $P_{3\omega}(T)$  вблизи  $T_c$ . Во-первых, пик нелинейности вблизи  $T_c$  с увеличением внешнего магнитного поля монотонно смещается в область меньших температур. При этом в малых полях

$H_{dc} < 100$  Гс сначала происходит рост пика нелинейности вблизи  $T_c$ , а затем, при увеличении поля до 450 Гс, амплитуда пика уменьшается. При дальнейшем увеличении постоянного магнитного поля возникает широкий максимум нелинейности, смещённый в область меньших температур. Величина низкотемпературного максимума нелинейности в этой области температур монотонно возрастает с увеличением внешнего постоянного магнитного поля. Сдвиг температурной зависимости нелинейного отклика в область меньших температур коррелирует с результатами измерений  $\rho(T)$  в постоянном магнитном поле, указывающих на уменьшение критической температуры плёнки Nb во внешнем магнитном поле.

По нашему мнению, сильная зависимость величины низкотемпературного максимума от внешнего постоянного магнитного поля свидетельствует о вихревой природе нелинейности. В то же время низкотемпературные максимумы во внешнем магнитном поле существуют при температурах, при которых отличен от нуля ток пиннинга  $j_p$  (рис. 5 и 13), поэтому нелинейность в сильных магнитных полях определяется, по-видимому, нелинейным откликом, обусловленным непараболичностью потенциала пиннинга. Увеличение низкотемпературного максимума в магнитных полях может быть связано с увеличением концентрации запиннированных вихрей во внешнем возрастающем магнитном поле. Таким образом, нелинейный отклик плёнок Nb в сильных магнитных полях при низких температурах, по нашему мнению, определяется откликом запиннированной вихревой решётки, созданной внешним магнитным полем.

В заключение этого раздела следует отметить, что природа наблюдаемой нелинейности СВЧ отклика сверхпроводников вблизи  $T_c$  нам до конца не ясна, поскольку при  $T \rightarrow T_c$  все критические токи  $j_c$ , характеризующие различные механизмы нелинейности, стремятся к нулю, и многие механизмы (по крайней мере, теоретически) могут давать свой вклад в полный нелинейный отклик. Однако поведение зависимости  $P_{3\omega}(H_{dc})$  для плёнок YBCO качественно отличается от поведения аналогичной зависимости для плёнок Nb. По нашему мнению, такое различие может прояснить природу нелинейности вблизи  $T_c$  в изучаемых сверхпроводниках.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе мы использовали простой локальный метод исследования нелинейных СВЧ свойств сверхпроводников. Методика основана на применении в качестве источника СВЧ поля ближнепольного зонда с индуктивной связью. Зонд представляет собой тонкий провод, закорачивающий внешний и внутренний проводники коаксиального кабеля. Данная методика позволяет изучать локальные нелинейные свойства сверхпроводников и получать пространственное распределение мощности третьей гармоники основного сигнала на поверхности плёнки ВТСП.

На основе представленной методики нелинейный отклик сверхпроводника был исследован в широких пределах изменения СВЧ мощности (амплитуды высокочастотного магнитного поля), а также в широкой области температур и постоянного магнитного поля для плёнок, монокристаллов, поликристаллов YBCO и плёнок Nb. Проведено сопоставление результатов СВЧ измерений с одновременно измеренными транспортными и магнитными свойствами исследуемых образцов.

Перечислим основные полученные результаты настоящей работы:

- 1) Показано, что основной нелинейный СВЧ отклик сверхпроводника сосредоточен вблизи температуры сверхпроводящего перехода  $T_c$ .
- 2) Локализация нелинейного отклика сверхпроводника вблизи  $T_c$  позволяет получать пространственное распределение критической температуры в плёнках YBCO.
- 3) Серия пиков в нелинейном отклике монокристаллов указывает на присутствие в них нескольких сверхпроводящих фаз с разной температурой сверхпроводящего перехода.

4) Нелинейный отклик при низких и промежуточных температурах ( $T < 0,9 T_c$ ) в плёнках и поликристаллах YBCO в отсутствие внешнего магнитного поля в значительной мере определяется наличием межгранульных джозефсоновских связей.

5) В некоторых плёнках Nb в отсутствие внешнего магнитного поля при температуре  $T = 4,2$  К, в отличие от плёнок YBCO, наблюдается порог в нелинейном отклике по мощности первой гармоники, который мы связываем с проникновением вихрей в области с подавленной сверхпроводимостью.

6) В плёнках YBCO и Nb в области температур, при которых ток пиннинга отличен от нуля, ясно прослеживается нелинейный отклик, связанный с движением вихрей, созданных внешним магнитным полем.

7) Эксперименты показали, что нелинейный отклик вблизи  $T_c$  как в плёнках YBCO, так и в плёнках Nb довольно чувствителен к внешнему магнитному полю, причём поведение зависимости  $P_{3\omega}(H_{dc})$  для плёнок YBCO качественно отличается от поведения аналогичной зависимости для плёнок Nb. К сожалению, пока мы не можем объяснить такое различие, однако поведение зависимости  $P_{3\omega}(H_{dc})$ , по нашему мнению, может прояснить природу нелинейности в изучаемых сверхпроводниках.

В заключение следует отметить, что окончательные выводы о природе нелинейности могут быть сделаны только на основе детального теоретического анализа нелинейного отклика сверхпроводников и дополнительных экспериментальных данных (например, результатов рентгеноструктурного анализа, химического анализа и т. д.).

Работа поддержана РФФИ (гранты № 00-02-16158, 01-02-06197, 02-02-06572 и частично грант № 00-02-16528), программой РАН по поддержке молодых учёных России, МНТП «Сверхпроводимость» (№ 99033). Авторы работы благодарны А. С. Мельникову и Д. А. Рыжову за полезные обсуждения, А. К. Воробьёву за изготовление плёнок YBCO, а также С. А. Чурину, Е. Ф. Куковицкому и С. Г. Львову (КФТИ РАН) за любезно предоставленные образцы керамики и монокристаллов YBCO.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nguyen P. P., Oates D. E., Dresselhaus G., Dresselhaus M. S. // Phys. Rev. B. 1993. V. 48. P. 6 400.
2. Wilker C., Shen Z.-Y., Pang P. // IEEE Trans. on Appl. Supercond. 1995. V. 5. P. 1 665.
3. Lung G.-Ch., Zhang D., Shih C.-Fu. et al. // IEEE Trans. on Microwave Theory Tech. 1995. V. 43. P. 3 020.
4. Samoilova T. B. // Supercond. Sci. Tech. 1995. V. 8. P. 259.
5. Горьков Л. П., Элиашберг Г. М. // ЖЭТФ. 1968. Т. 54. С. 612.
6. Боровицкая Е. С., Генкин В. М., Левиев Г. И. // ЖЭТФ. 1996. Т. 110. С. 1 081.
7. Больгинов В. В., Генкин В. М., Левиев Г. И., Овчинникова Л. В. // ЖЭТФ. 1999. Т. 115. С. 2 242.
8. Halbritter J. // J. of Supercond. 1995. V. 8. P. 691.
9. Van der Beek C. J., Geshkenbein V. B., Vinokur V. M. // Phys. Rev. B. 1993. V. 48. P. 3 393.
10. Belk N., Oates D. E., Feld D. A. et al. // Phys. Rev. B. 1997. V. 56. P. 11 966.
11. Golosovsky M., Davidov D., Farber E. et al. // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. P. 10 390.
12. Жаров А. А., Коротков А. Л., Резник А. Н. // Сверхпроводимость. 1992. Т. 5. С. 419.
13. Hein M., Diete W., Getta M. et al. // IEEE Trans. on Appl. Supercond. 1997. V. 7. P. 1 264.
14. Pestov E. E., Kurin V. V., Nozdrin Yu. N. // IEEE Trans. on Appl. Supercond. 2001. V. 11. P. 131.
15. Hampel G., Batlog B., Krishana K. et al. // Appl. Phys. Lett. 1997. V. 71. P. 3 904.

16. Ciccaterello I., Fasio C., Gucieone M. et al. // Phys. Rev. B. 1994. V. 49. P. 6 280.
17. Кошелев А. Е., Левиев Г. И., Папикян Р. С. // ЖЭТФ. 1993. Т. 103. С. 942.
18. Hu W., Thanawalla A. S., Feenstra B. J. et al. // Appl. Phys. Lett. 1999. V. 75. P. 2 824.
19. Вайнштейн Л. А. Электромагнитные волны. М.: Радио и связь, 1988.
20. Физические величины: Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1991.
21. Шмидт В. В. Введение в физику сверхпроводников. М.: Наука, 1982.
22. Плакида Н. М. Высокотемпературные сверхпроводники. М.: Международная программа образования, 1996.
23. Де Жен П. Сверхпроводимость металлов и сплавов. М.: Мир, 1968.
24. Micheenko P. N., Kuzovlev Yu. E. // Phys. C. 1993. V. 204. P. 229.
25. Аладышкин А. Ю., Воробьев А. К., Вышеславцев П. П. и др. // ЖЭТФ. 1999. Т. 116. С. 1 735.
26. Сонин Э. Б. // Письма в ЖЭТФ. 1988. Т. 47. С. 415.
27. Chin C. C., Oates D. E., Dresselhaus G., Dresselhaus M. S. // Phys. Rev. B. 1992. V. 45. P. 4 788.

<sup>1</sup> Институт физики микроструктур РАН, г. Нижний  
Новгород, Россия

Поступила в редакцию  
25 февраля 2003 г.

<sup>2</sup> Dipartimento di Fisica, Università di Salerno, Italy

#### STUDY OF NONLINEAR RESPONSE OF SUPERCONDUCTORS IN THE MICROWAVE BAND USING A LOCAL TECHNIQUE

*A. Yu. Aladyshkin, A. A. Andronov, E. E. Pestov, Yu. N. Nozdrin, V. V. Kurin,  
A. M. Cucolo, R. Monaco, and M. Boffa*

Using a local technique, we study the microwave radiation power  $P_{3\omega}(T, P_{\omega}, H_{dc})$  at the triple frequency of the main signal as a function of the temperature  $T$ , the input power  $P_{\omega}$ , and the external magnetic field  $H_{dc}$  perpendicular to the superconductor surface for  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (YBCO) films, monocrystals, and polycrystals and for Nb films. The most distinctive feature of the temperature dependence  $P_{3\omega}(T)$  of nonlinear response of superconductors is a maximum of the nonlinearity near the critical temperature  $T_c$ . Spatial distributions of the third-harmonic power are obtained for YBCO films at various temperatures. These distributions are indicative of nonuniform distribution of  $T_c$  over the superconductor surface. Additional nonlinearity maxima are discovered in the dependence  $P_{3\omega}(T)$  for YBCO films and monocrystals at temperatures about  $2T_c/3$ . These maxima are probably related to the existence of several superconducting phases with different critical temperatures. For Nb films, the second nonlinearity maximum in the dependence  $P_{3\omega}(T)$  appears only in the presence of an external magnetic field. The experimental data are interpreted within the framework of a two-fluid model of a superconductor, which takes into account the phenomenological nonlinear relationship between the vector potential  $\mathbf{A}$  and the superconducting current  $j_s(\mathbf{A})$ . The origin of nonlinearity in the studied superconductors is discussed.