

YBa₂Cu₃O_{7-δ}/LaAlO₃ 和 Tl₂Ba₂CaCu₂O₈/LaAlO₃ 高温超导薄膜内的应变对其微波表面 电阻影响的研究*

史力斌^{1)†} 郑 岩¹⁾ 任骏原¹⁾ 李明标¹⁾ 张国华²⁾

1) 渤海大学物理系, 锦州 121000)

2) 北京科技大学应用科学学院物理系, 北京 100083)

(2007 年 6 月 2 日收到, 2007 年 6 月 15 日收到修改稿)

YBa₂Cu₃O_{7-δ}/LaAlO₃(YBCO/LAO) 超导薄膜是通过热蒸发沉积方法制备的, 实验中使用的 Tl₂Ba₂CaCu₂O₈/LaAlO₃(TBCCO/LAO) 超导薄膜是通过直流磁控溅射方法制备的. 通过分析两片超导薄膜的 XRD 谱计算出了两片超导薄膜内的应变 $\Delta C_V = 4.8483 \times 10^{-3}$, $\Delta C_T = 8.5272 \times 10^{-5}$. 结果显示 YBCO 超导薄膜内的应变要大于 TBCCO 超导薄膜内的应变. 另外, 采用共面谐振技术研究这两片超导薄膜内的微波表面电阻随温度的变化, 结果表明 YBCO 超导薄膜具有更大的微波表面电阻. 分析和讨论了应变对超导薄膜微波表面电阻的影响.

关键词: YBCO/LAO, TBCCO/LAO, 超导薄膜, 应变, 表面电阻

PACC: 7400, 7430F, 7475

1. 引 言

高温超导薄膜在微波场中由于具有较低的功率损耗, 用高温超导薄膜制成的微波器件如谐振器、滤波器、天线和延时线, 由于其性能独特, 从而使其在移动通讯、气象探测、航天、军事等方面具有潜在的应用前景. 但超导薄膜在微波场中显现出大量的非线性响应, 这些非线性特性限制了器件的广泛应用^[1-5]. 了解超导薄膜微波非线性产生的原因和其微观本质可以使我们更好地控制这些材料的微波非线性特性. 生长在衬底上的超导薄膜由于衬底和薄膜材料晶格常数的差异以及薄膜生长过程中其他因素的影响, 导致了超导薄膜内会产生一定的应变或应力, 应变或应力对超导薄膜微波特性有着重要的影响^[6-9].

利用超导薄膜样品的 XRD 谱分析出了超导薄膜内的应变, 通过共面谐振技术得到了超导薄膜微波表面电阻随温度的变化. 通过对比 YBCO/LAO 和 TBCCO/LAO 超导薄膜内的应变和其微波表面电阻

分析了应变对超导薄膜微波特性的影响.

2. 共面谐振器理论

对于很难建立多层结构的超导材料, 采用共面谐振技术是研究超导材料微波特性的有力工具. 对于共面谐振器, 共振频率可写为 $f_0 = \frac{1}{\lambda_g \sqrt{LC}}$, λ_g 是共面谐振器的导波波长(对于基模, $\lambda_g = 2l$, l 是共面谐振器中心带线的长度), L 是共面传输线上单位长度的电感, C 是共面传输线上单位长度的电容. 如果认为共面谐振器的电容 C 不随温度发生变化(因为共面谐振器的电容与超导薄膜衬底的介电常数 ϵ 成正比, 而 ϵ 随温度变化很小, 因此电容随温度变化很小), 根据共振频率的表达式能得到如下方程:

$$\frac{f_0(T)}{f_0(T_0)} = \sqrt{\frac{L^g + L^k(\lambda(T_0))}{L^g + L^k(\lambda(T))}}, \quad (1)$$

其中 T_0 是实验中选取的参考温度, 一般是实验设备所能达到的最低温度. 对于共面谐振器, 单位长度

* 国家自然科学基金(批准号:10174006)资助的课题.

† E-mail: slb0813@sohu.com

总的电感 L 由几何电感 L^g 和动能电感 L^k 构成, 即 $L = L^k + L^g$. 几何电感由共面谐振器的几何性质决定, 动能电感由共面谐振器中心带线载流子性质决定. 利用(1)式通过对谐振器共振频率的拟合可以获得超导材料的穿透深度 $\lambda(T)$. 对于无限宽的地平面和很薄的超导材料制成的共面谐振器, 超导材料的微波表面电阻可以由下式决定^[10-12]:

$$R_s = \frac{2\pi f_0(T)Lw}{(A_1 + A_2)Q_u}, \quad (2)$$

其中

$$A_1 = \frac{2}{\left[M\left(\frac{w}{a}\right)\right]^2 \left[1 - \left(\frac{w}{a}\right)^2\right]} \left[1 + \frac{1}{4} \ln\left(\frac{w}{\lambda'(T)}\right) - 1\right] - \frac{w}{4a} \ln\left(\frac{a+w-2\lambda'(T)}{a-w+2\lambda'(T)}\right),$$

$$A_2 = \frac{2\frac{w}{a}}{\left[M\left(\frac{w}{a}\right)\right]^2 \left[1 - \left(\frac{w}{a}\right)^2\right]} \left[1 + \frac{1}{4} \ln\left(\frac{a}{\lambda'(T)}\right) + 1\right] - \frac{a}{4w} \ln\left(\frac{a+w-2\lambda'(T)}{a-w+2\lambda'(T)}\right),$$

式中 M 是第一种完全椭圆积分. 带线边缘处的有效穿透深度 λ' 与伦敦穿透深度 λ 的关系可以写为 $\lambda'(T) = \frac{2\lambda^2(T)}{t}$, t 是超导薄膜的厚度. w 是中心线带宽度. 中心带线与每个接地板的距离是 s 和 $a = w + 2s$. Q_u 是谐振器的无载品质因数.

3. 实 验

实验中使用的 YBCO/LAO 是由热蒸发沉积方法得到的, 其具体的生长工艺可见文献[13]. YBCO 薄膜的厚度 $t = 700$ nm. 实验中使用的 TBCCO/LAO 薄膜由磁控溅射方法制备的. 它的制备分为两步: 首先利用直流磁控溅射的方法在 LAO 衬底上沉积一层无定形的 Tl-Ba-Ca-Cu-O 的先驱膜, 磁控溅射所用的靶由 CaO, BaO, CuO 和 Tl_2O_3 组成的粉末以 3Tl:2Ba:1.2Ca:2Cu 均匀混合后经固态反应制得; 然后将膜密封在一特制的坩埚中, 在 730°C 下退火 5 h, 使其转化为 2212 相. 实验中所用的 TBCCO 薄膜厚度是 430 nm.

实验中, 为了了解超导薄膜的结构特征, 对 YBCO/LAO 和 TBCCO/LAO 样品进行了 X 射线衍射测量, 实验是在中国科学院物理所的 M18XHF X 射线衍射仪上完成的. 从 X 射线衍射谱可以看到两种

薄膜的 XRD 图谱(见图 1)均只有(00 n)族峰和基底峰出现, 没有其他的杂峰, 这表明这些薄膜的单向性非常好. 从图中可以看出三种薄膜均是 c 轴方向生长的, 即薄膜的 c 轴方向是薄膜表面的法向方向. 为了分析超导薄膜的表面形貌特征, 用扫描电子显微镜(SEM)观察了 YBCO/LAO 和 TBCCO/LAO 超导薄膜的表面. 本文中对超导薄膜的 SEM 测量是在中国科学院物理研究所的 XL30 SEM 上进行的. 从图 2 中可以看出这两片超导薄膜表面比较光滑平整, 成膜质量较高.

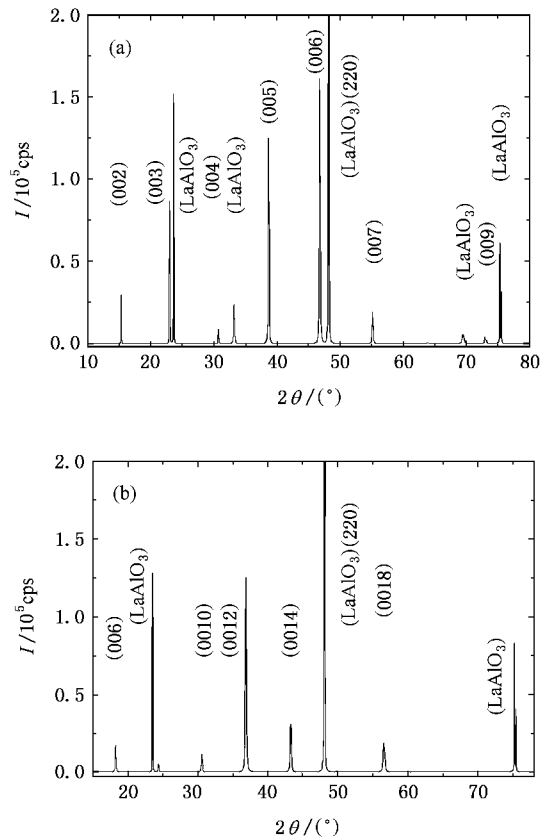


图 1 YBCO/LAO(a) 和 TBCCO/LAO(b) 样品的 XRD 谱

通过光刻和离子束刻蚀 YBCO 和 TBCCO 超导薄膜可以在 10×10 的 LAO 衬底上获得图 3 所示的共面谐振器. 谐振器的中心线宽 $w = 200 \mu\text{m}$, 中心线与接地板的距离 $s = 180 \mu\text{m}$, 谐振器中心线的长度 $l_r = 6$ mm, 中心线和端子线的距离 $l_g = 0.5$ mm, t 是超导薄膜厚度和 $d = 0.5$ mm 是薄膜衬底的厚度. 为了保护 and 电屏蔽共面谐振器, 使得测量结果更加精确, 共面谐振器通常被装在铜腔中进行测量(如图 3 所示). 为了使谐振器与铜腔保持良好接触, 铜腔的内表面镀了一层银. 在装配过程中, 银胶被用来实现

谐振器与铜腔内壁的连接. 谐振器和铜腔的完好接触对于共面谐振器的测量具有重要意义, 否则谐振器和铜腔间小的裂缝会引发其他模式的产生, 如果这些模式离所测量的模式离的很近, 会引发测量信号失真, 其结果会使测量的精确度下降. 在 340 温控

仪和 CSW-71 压缩机控制下, 由 Agilent 8510c 网络分析仪可以测量出共面谐振器的 S_{21} 共振曲线. 对不同温度下的 S_{21} 共振曲线进行 Lorentzian 拟合可以求出其无载品质因数 Q_u 和共振频率 f_0 随温度变化的曲线.

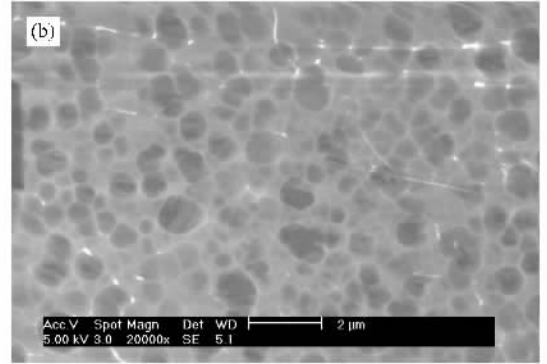
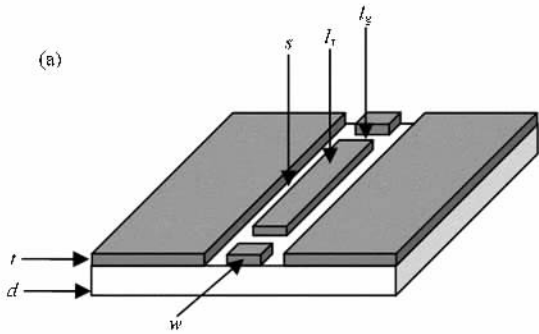


图 2 YBCO/LAO (a) 和 TBCCO/LAO (b) 样品的 SEM 图片



4. 实验结果的分析与讨论

为了获得两片超导薄膜的超导转变温度, 利用低温强磁场测量系统, 采用了标准的四引线方法对两片超导薄膜进行了磁场平行于薄膜表面和磁场垂直于薄膜表面两种情况的 $R-T$ 曲线的测量. 在测量中通过样品的电流保持恒定 $I = 1 \text{ mA}$. $R-T$ 曲线的测量程序如下: 在 $T > T_c$ 时给薄膜外加一恒定磁场 H_1 , 保持磁场不变, 使样品缓慢降温, 在降温过程中测量 $H = H_1$ 时的 $R-T$ 曲线, 然后将样品升温至 $T > T_c$, 在 $T > T_c$ 时将外磁场由 H_1 变为 H_2 , 保持 H_2 不变, 使样品缓慢降温测量 $H = H_2$ 时的 $R-T$ 曲线. 按照相同的测量程序分别测量 $H = 0, 1, 2, 3, 4, 5 \text{ T}$ 的 $R-T$ 曲线, 其结果见图 4 和图 5. R_N 是正常态电阻的切线和转变电阻的切线的交点对应的电阻, 把 $R_N/2$ 定义为超导薄膜的转变电阻, 对应的温度定义为超导薄膜的中点转变温度, 通常称为超导体的转变温度. 从图中可以看到两片超导薄膜的转变温度随磁场的增加而降低. 通过对实验数据的分析可以获得 YBCO 和 TBCCO 在零场下的超导转变温度分别是 89 和 103 K.

从图 4 和图 5 中可以看出两片超导薄膜在不同方向的磁场中显现出各向异性的特征. 对于 YBCO 在 ab 平面和 c 方向有着不同的物理性质, 对于各向异性度不是很高的 YBCO 体系, 可以用具有各向异

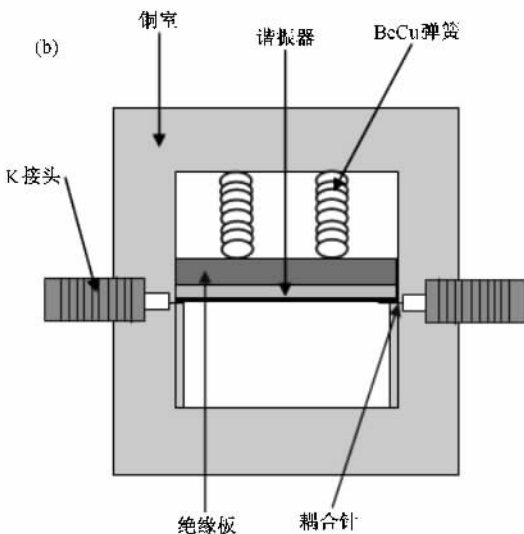


图 3 共面谐振器示意图 (a) 及装配在铜室中的共面谐振器示意图 (b)

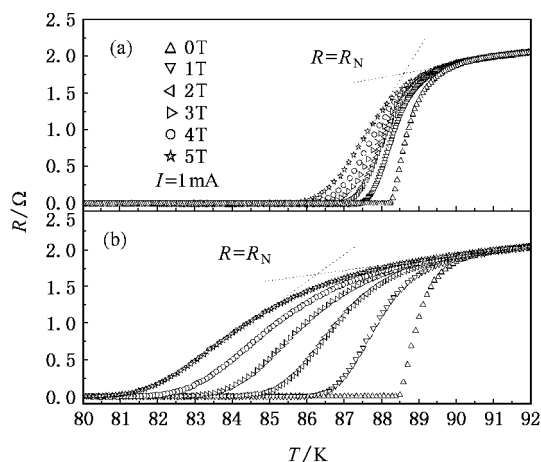


图 4 在不同磁场下 YBCO/LAO 样品电阻与温度的依赖关系 (a) 磁场平行于超导薄膜 (b) 磁场垂直于超导薄膜

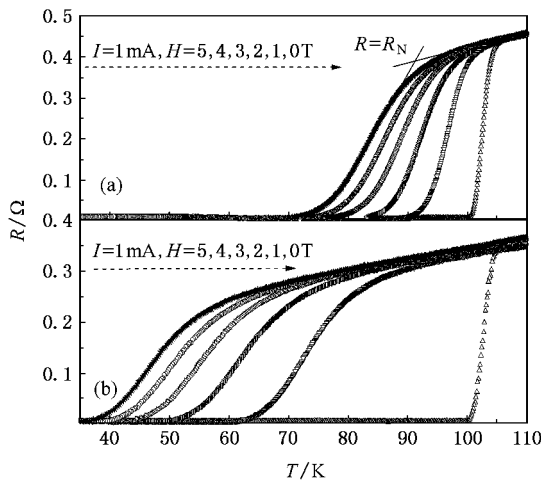


图 5 在不同磁场下 TBCCO/LAO 样品电阻与温度的依赖关系 (a) 磁场平行于超导薄膜 (b) 磁场垂直于超导薄膜

性的连续模型来描述^[14]. YBCO 的 *ab* 方向的 CuO_2 平面被认为是与该材料超导电性相关的, 现在已经公认超导就发生在这种导电层上, 而 *b* 方向的 Cu-O 链被认为对超导电子的输运性质有重要影响, BaO-CuO-BaO 通常被认为是载流子层, 超导的产生有赖于载流子库层向 CuO_2 导电层提供多余的电荷. YBCO 的这种层状结构可以分为弱耦合超导区 (BaO-CuO-BaO 层) 和强耦合超导区 (CuO_2). YBCO 各向异性的特点决定了该物质在 *ab* 平面和 *c* 方向具有不同的输运特性, 对于 *c* 方向生长的 YBCO/LAO 超导薄膜, 当磁场平行超导薄膜平面时, 在 YBCO/LAO 超导薄膜内磁通线平行于 *ab* 平面, 当磁通线处于面间弱超导耦合区时, 层间的弱耦合超导

区构成了对磁通线的强钉扎势阱, 这样使 YBCO/LAO 超导薄膜在磁场平行于薄膜表面时的超导转变在较小的宽度范围内实现, 而当磁场垂直于超导薄膜表面时, 由于磁通线很短, 容易发生移动, 因而 YBCO/LAO 超导薄膜在磁场垂直于薄膜表面时的超导转变在很宽的一个范围内实现. 对于各向异性度很高的 TBCCO/LAO 超导薄膜, 可以用准二维的超导平面上层间耦合的 Lawrence-Doniach 分离模型来描述, 这种展宽可以用超导薄膜内的约瑟夫森涡旋和涡旋饼来解释^[14]. 当磁场平行于超导薄膜时, 在转变温度附近, 磁通以约瑟夫森涡旋的形式进入超导薄膜; 当磁场垂直于超导薄膜时, 在转变温度附近, 磁通以涡旋饼形式进入超导薄膜. 在尺寸上, 约瑟夫森涡旋比涡旋饼更大, 当约瑟夫森涡旋处于面间的弱超导耦合区时, 弱超导耦合区会对约瑟夫森涡旋构成很强的钉扎势阱, 很强的钉扎势使约瑟夫森涡旋只有在很大激活能下才能发生移动. 对于涡旋饼由于具有很小的尺寸, 并且同层内的涡旋饼之间存在排斥作用, 不同层间涡旋饼之间通过电磁或超导相位关联而发生相互吸引作用, 不同层上的涡旋饼会垂直于平面排成一串, 涡旋饼的这种结构使它在磁场下比约瑟夫森涡旋更容易发生移动. 从 *R-T* 曲线可以看出 TBCCO 超导薄膜比 YBCO 超导薄膜具有更加明显的电阻展宽现象.

在测量超导薄膜的 X 射线衍射谱时, 由于样品安放的原因, 有时会带来测量衍射峰位的几何误差, 在处理薄膜 X 射线的衍射数据时有必要修正这一误差. 在分析 TBCCO/LAO 和 YBCO/LAO 的 X 射线衍射谱时, 我们发现该样品衬底 $\text{LAO}(220)$ 衍射峰很强, 所以我们用标准的 $\text{LAO}(220)$ 衍射峰来修正超导薄膜样品由于安放不正确所带来的测量误差. 通过对 YBCO 薄膜衬底 $\text{LAO}(220)$ 衍射峰的分析可以获得衍射角 $2\theta^* = 48.120^\circ$; 通过对 TBCCO 薄膜衬底 $\text{LAO}(220)$ 衍射峰的分析可以获得衍射角 $2\theta^* = 48.050^\circ$. 而 PDF 卡片上标准样品的 $\text{LAO}(220)$ 的衍射角为 $2\theta = 47.958^\circ$. 得到了样品最强峰位的衍射角的测量值和标准值后, 样品的 XRD 的修正具体做法如下: 1) 计算出由实验数据得出最强峰位的衍射角与标准样品在该峰位的衍射角的差. 2) 用上一步得出的衍射角的差来修正 YBCO 和 TBCCO 超导薄膜的峰位. 注意, 如果上一步得出的衍射角为正值, 这说明由于样品安放的偏差使得实测的衍射角比正确安放样品所对应的衍射角偏大, 因此在进行 YBCO

衍射峰计算时要减去这一偏差。

YBCO 和 TBCCO 超导薄膜 c 方向的晶格常数 c_f 可以由修正后的超导样品的 X 射线衍射谱得出, 根据布拉格公式 $2d\sin\theta = k\lambda$ ($k=1$), X 射线衍射实验中用的铜的波长 $\lambda = 0.15406$ nm, 对于 c 轴生长的薄膜由布拉格公式可以得出计算 c_f 的表达式:

$$c_f = \frac{1.5406}{\sin\theta} \frac{n}{2}, \quad (3)$$

其中 2θ 是该薄膜的 X 射线衍射谱(修正后)在各个峰位所对应的衍射角, n 是峰位。在本文中我们对薄膜的 X 射线衍射谱的各个峰位进行了计算, 得出了一系列的 c_f , 然后对这些 c_f 求平均。在 LAO 衬底上的 YBCO 薄膜和 TBCCO 薄膜的 c 轴方向的晶格常数 c_f 可见表 1。

表 1 利用修正后的 X 射线衍射谱得到的 TBCCO/LAO 和 YBCO/LAO 超导薄膜在 c 方向的晶格常数

YBCO/LAO 样品的 X 射线衍射的峰位	c_f/nm	TBCCO/LAO 样品的 X 射线衍射的峰位	c_f/nm
(002)	1.16810	(006)	2.93217
(003)	1.16872	(008)	2.93289
(004)	1.16925	(0010)	2.93343
(005)	1.16918	(0012)	2.93244
(006)	1.16922	(0014)	2.93092
(007)	1.16897	(0018)	2.93044
(009)	1.16913		
平均值	1.16894		2.93205

获得了 c_f , 对于 c 轴取向的超导薄膜中的应变由如下计算公式给出:

$$\Delta C = \frac{c_b - c_f}{c_b}, \quad (4)$$

其中 c_b 为超导块体材料的 c 轴方向的晶格常数。对于 YBCO 和 TBCCO 薄膜我们得到的应变如下:

$$\begin{aligned} \Delta C_Y &= (1.16894 - 1.16330)/1.16330 \\ &= 4.8483 \times 10^{-3}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \Delta C_T &= (2.93205 - 2.93180)/2.93180 \\ &= 8.5272 \times 10^{-5}. \end{aligned}$$

从计算结果可以看出 YBCO 超导薄膜内的应变要大于 TBCCO 超导薄膜内的应变。图 6 和图 7 给出了由共面谐振技术得到的两片超导薄膜共振频率和无载品质因数随约化温度($t = T/T_c$)的变化曲线。从共振频率的曲线可以看出随着温度的升高谐振器的共振频率逐渐向下漂移, 这反应了随着温度升高微波

电流逐渐穿透样品, 而从无载品质因数随温度的变化曲线可以看出随着温度的升高无载品质因数降低, 反应超导薄膜的微波表面电阻随温度的升高而变大。

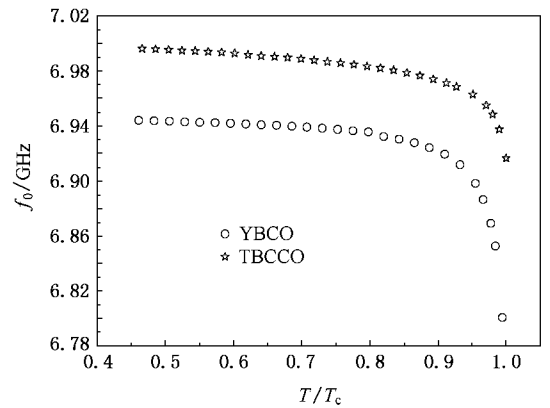


图 6 YBCO/LAO 和 TBCCO/LAO 超导薄膜共振频率随约化温度的依赖关系

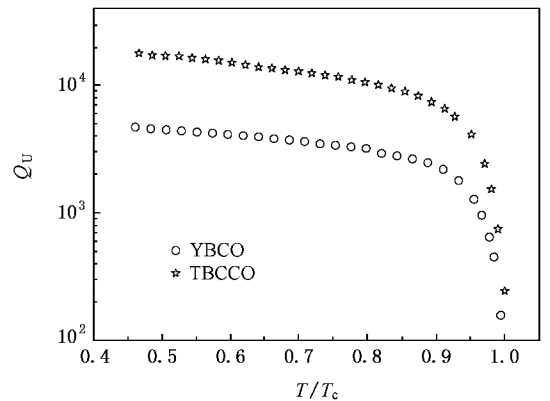


图 7 YBCO/LAO 和 TBCCO/LAO 超导薄膜无载品质因数随约化温度的依赖关系

利用(2)式可以进一步得出超导薄膜微波表面电阻随温度的变化关系, 从图 8 中可以看出在相同的约化温度或相同温度处 YBCO 超导薄膜的微波表面电阻要大于 TBCCO 超导薄膜的微波表面电阻。认为 YBCO 超导薄膜具有较大的微波表面电阻与其具有较大的应变有关。YBCO 超导薄膜内较大应变会使得该超导薄膜内具有较大的应力, 而超导薄膜内的应力增加导致超导薄膜微波表面电阻变大来源于以下几方面因素: 1) 超导薄膜内应力的增加可以降低铜酸盐超导体铜氧面上载流子的浓度, 而铜氧面上载流子的浓度对于超导薄膜的微波表面电阻有重要影响^[6]。2) 超导材料费米面的性质对于超导薄膜

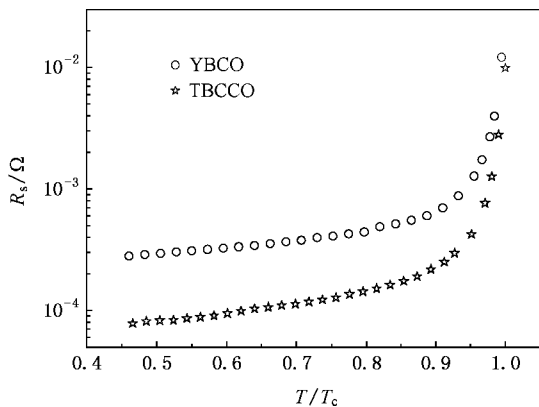


图 8 YBCO/LAO 和 TBCCO/LAO 超导薄膜微波表面电阻随约化温度的依赖关系

的电子输运性质有重要影响,而超导薄膜内应力的增加会导致超导材料晶格常数发生畸变,这些畸变会引发超导材料费米面形状和其附近的态密度发生变化,从而造成了该材料能带结构发生一定的变化.这些变化直接影响着超导材料的电子输运性质,造成了超导薄膜微波表面电阻的增加^[8].3) 超导薄膜内应力的增加导致了超导材料的晶格点阵发生畸变,从而在一定程度上破坏了晶格点阵的有序性,晶格点阵的有序性的破坏造成了对电子散射的增强,导致了微波表面电阻的变大^[9].

本工作感谢中国科学院物理所何豫生研究员和北京科技大学应用学院的罗胜和丘宏教授的指导与帮助.

- [1] Velichko A V , Lancaster M J , Chakalov R A 2002 *Phys. Rev. B* **65** 104522
- [2] Banerjee T , Kanjilal D , Pinto R 2002 *Phys. Rev. B* **65** 174521
- [3] Velichko A V , Huish D W , Lancaster M J 2003 *IEEE Trans. Appl. Supercond* **13** 3598
- [4] Oates D E , Hein M A , Hirst P J 2002 *Physica C* **372—376** 462
- [5] Wang S F , Jin B B , Liu Z , Zhou Y L , Chen Z H , Lü H B , Cheng B L , Yang G Z 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2325 [in Chinese] 王淑芳、B. B. Jin、刘震、周岳亮、陈正豪、吕惠宾、程波林、杨国桢 2005 *物理学报* **54** 2325]
- [6] Chen X F , Tessema G X , Skove M J 1993 *Phys Rev. B* **48** 13141
- [7] Tessema G X , Tseng Y T , Skove M J 1991 *Phys. Rev. B* **43** 3434
- [8] Tritt T M , Stillwell E P , Skove M J 1986 *Phys. Rev. B* **34** 6799

- [9] Stillwell E P , Ehrlich A C , Kamm C N 1989 *Phys. Rev. B* **39** 1626
- [10] Ghigo G , Botta D , Chiodoni A , Gerbaldo R , Gozzelino L , Laviano F , Minetti B , Mezzetti E , Andreone D 2004 *Supercond Sci. Tech.* **17** 977
- [11] Vendik O G , Vendik I B , Kaparkov D I 1998 *IEEE Trans. Microwave. Theory Tech.* **46** 469
- [12] Shi L B , Wang Y F , Ke Y Y , Zhang G H , Luo S 2007 *Chin. Phys.* **16** 799
- [13] Kinder H , Berberich P , Prusseit W , Rieder-Zccha S 1997 *Physica C* **282—287** 107
- [14] Blatter G , Fegelman M , Geshkenbein V B , Larkin A I 1994 *Rev. Mod. Phys.* **66** 1125



Strain effect on microwave surface resistance of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/\text{LaAlO}_3$ and $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8/\text{LaAlO}_3$ high temperature superconducting thin films *

Shi Li-Bin^{1)†} Zheng Yan¹⁾ Ren Jun-Yuan¹⁾ Li Ming-Biao¹⁾ Zhang Guo-Hua²⁾

¹⁾ Department of Physics, Bohai University, Jinzhou 121000, China)

²⁾ Department of Physics, School of Applied Science, Beijing University of Science and Technology, Beijing 100083, China)

(Received 2 June 2007 ; revised manuscript received 15 June 2007)

Abstract

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) thin films were prepared by thermal coevaporation on (LaAlO_3) LAO substrates , and $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (TBCCO) thin films were synthesized by magnetron sputtering method on LAO substrates . We obtained the strain from the results of XRD of the films which had the values of $\Delta C_Y = 4.8483 \times 10^{-3}$ and $\Delta C_T = 8.5272 \times 10^{-5}$. We found that the strain in YBCO was larger than that in TBCCO . In addition , the curve of surface resistance of the films as a function of temperature was obtained by coplanar resonator technique , which showed the resistance of YBCO was larger than that of TBCCO at the same reduced temperature . In the paper , we also analyzed the strain effect on the surface resistance of the films .

Keywords : YBCO/LAO , TBCCO/LAO , superconducting films , strain , surface resistance

PACC : 7400 , 7430F , 7475

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10174006) .

† E-mail : slb0813@sohu.com