

高温超导薄膜微波非线性研究的进展

史力斌¹ 王东¹ 张琛¹ 张国华¹ 罗胜¹
张雪强² 李春光² 黎红² 何豫生²

(1 北京科技大学应用学院物理系 北京 100083)

(2 中国科学院物理研究所 北京 100080)

摘要 文章介绍了高温超导薄膜微波非线性的主要特征,阐述了高温超导薄膜微波非线性产生的原因和相关的研究现状,指出了高温超导薄膜非线性研究中遇到的困难和尚未解决的问题。

关键词 高温超导,薄膜,微波,非线性

Recent studies of the nonlinear microwave properties of high temperature superconducting thin films

SHI Li-Bin¹ WANG Dong¹ ZHANG Chen¹ ZHANG Guo-Hua¹ LUO Sheng¹
ZHANG Xue-Qiang² LI Chun-Guang² LI Hong² HE Yu-Sheng²

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

(2 Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

Abstract Recent developments in the study of the nonlinear microwave properties of high temperature superconducting thin films are reviewed. The typical non-linear dependence of the surface impedance of such films on frequency, temperature and microwave power is described. Various possible sources of the nonlinearity are surveyed and problems that need to be solved are also discussed.

Keywords high temperature superconductor, thin film, microwave, nonlinearity

1 引言

高温超导薄膜在微波场中表现出明显的非线性特征,引起了广泛重视。这一方面由于微波非线性行为的研究为我们打开了一条探索超导电性机理的通路,包括,例如对射频涡旋线的产生、运动和湮灭,涡旋线内核中准粒子非线性动力学行为等的研究,有些问题甚至直接涉及到高温超导电性的本质。另一方面,由于高温超导薄膜制成的微波器件如滤波器、天线和延时线等,具有广泛的应用前景,而这些器件的性能又受到微波非线性极大的制约。因此,高温超导体微波非线性研究不论对于基础研究还是应用实

践都具有十分重要的意义。

2 高温超导薄膜微波表面电阻与频率和温度的非线性关系

微波场下,把金属表面的电场与平行电场方向单位长度的表面电流的比值定义为金属的表面阻抗。在经典极限下,金属的表面阻抗可写为

$$Z_s = R_s + iX_s = i\omega\mu_0\delta_c \quad \delta_c = \sqrt{\frac{1}{i\omega\mu_0\sigma}}$$

定义为金属的复趋肤深度。如果假设电导 σ 不随频率 f 变化,不难

2005-10-08 收到

看出,正常金属的表面电阻 $R_s \propto f^{1/2}$. 对于超导体,局域电动力学极限下 ($\sigma \gg \omega \epsilon$),超导体表面阻抗可表示为 $Z_s = R_s + iX_s = i\omega\mu_0\lambda(\omega B, T)\lambda = \sqrt{\frac{1}{i\omega\mu_0\sigma}}$ 为超导体的复穿透深度, $\sigma = \sigma_1 - i\sigma_2$ 为超导体的复电导. 根据二流体模型,在满足一定条件下 ($\sigma_2 \gg \sigma_1$),可以得到 $R_s = \frac{\omega^2\mu^2\sigma_1\lambda^3}{2}$, $X_s = \omega\mu\lambda$. 如果假设电导 σ_1 不随频率 f 变化,超导体的表面电阻满足 $R_s \propto f^2$. 这种非线性关系清楚地表现在图 1 中. 正是由于这种非线性幂指数的差异,造成在相当频率范围内(例如 30GHz 以下)超导体的表面电阻远远小于正常金属,为高温超导微波器件在经济、国防和社会生活上的应用,提供了广阔的发展空间.

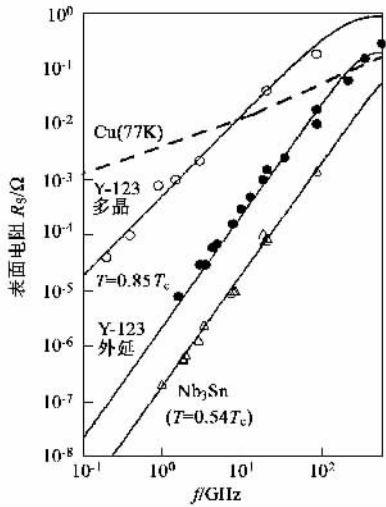


图 1 高温超导薄膜与铜的微波表面电阻的频率特性. 图中虚线为铜在 77K 时的 R_s , o 为多晶 YBCO 数据, • 为外延 YBCO 薄膜数据, Δ 为常规超导体 Nb_3Sn 数据^[3]

随着研究的深入发展,人们发现高温超导薄膜表面电阻与频率的非线性关系,远比二流体模型,以及 1990 年代发展的微波磁通动力学理论(C-C 理论^[1])所预言的要复杂的多. 例如,有人发现,在外加磁场为零时, $R_s \propto f^2$; 在外加磁场不为零时, $R_s \propto f^n$, $n < 2$. 还有实验表明高温超导薄膜的局域缺陷可能导致对标度指数 $n=2$ 的偏离,例如出现 n 分别为 2.54, 1.73 等情况^[2].

高温超导薄膜的微波表面电阻随温度变化的非线性关系,大致可以划分为三个区域,分别呈现出不同的典型特征(1)陡降区, T_c 附近表面电阻急剧下降,来源于伴随超导转变伦敦穿透深度的急剧变化;(2)平缓区,当温度 $T < 0.8 T_c$ 左右,表面电阻变化

相对平缓,因此,这个温度范围也是微波器件的实际工作温区(3)剩余电阻区,极低温下高温超导薄膜显示出一个较高的剩余表面电阻.

应当指出,以上给出的表面阻抗与频率、温度的依赖关系一般都是在小功率极限条件下的结果,即在这个极限条件内,还看不出表面阻抗对功率的依赖关系,因而,还不是当前文献中普遍关心的典型意义的“非线性问题”,尽管他们涉及到的物理问题的重要性不容置疑(如超导波函数对称性问题). 因此,人们往往把以上问题归结为“线性响应”,而把高温超导薄膜的非线性问题聚焦在表面阻抗与微波功率关系上.

3 高温超导薄膜微波表面阻抗与场和功率的非线性关系

3.1 高温超导薄膜的正常微波非线性行为

尽管文献中高温超导薄膜表面阻抗与微波功率关系的实验结果差异很大,但是一般说来,低场下高质量外延薄膜的 R_s 和 X_s 大都显示出与 H_{rf}^2 的依赖关系. 典型结果如图 2 所示. 普遍认为:低场下的平方关系源于库珀电子对在微波场的加速下由于超过临界速度而解体所致,即所谓金兹堡-朗道破对机制;其后陡度的增加(例如 4 次方关系)则主要由穿透到超导颗粒中的涡旋线的迴滞运动所决定.

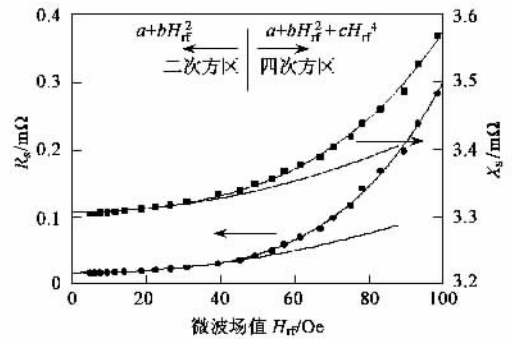


图 2 典型的高质量 YBCO 薄膜的表面电阻(左)和电抗(右)与微波场的依赖关系(77.4K, 1.5GHz)^[4]

实际上,由于制备方法、工艺过程、衬底的不同,超导薄膜与微波场会显示出不同的依赖关系,包括准线性、线性、二次,甚至更高次(例如 4 次)的依赖关系^[5],一度使人困惑不解. 图 3 的结果,给了我们解开这个迷惑的线索. 实验是在制备方法相同(电子束蒸发法),但具体工艺过程不同的三片 YBCO

外延薄膜 (MgO 衬底) 上进行的, 工艺过程不同造成了薄膜的质量不同, 将薄膜制成共面谐振器 (中心频率 8GHz), 在 15K 下测量, 得到表面电阻、表面电抗在微波场下的增量 $\Delta R_s(H_{rf})$ 和 $\Delta X_s(H_{rf})$ 与微波场的关系曲线, 可以看出: 尽管三片薄膜的 $\Delta R_s(H_{rf})$ 表现出差异极大的行为 (从上升、几乎不变到下降), 他们的 $\Delta X_s(H_{rf})$ 随微波场的变化却极为相似. 考虑到二流体模型 $R_s \propto \sigma_1$ ($\sigma_1 \propto n_n \tau$, 其中 n_n 是准粒子浓度, τ 是准粒子散射时间常数), $R_s(H_{rf})$ 的这种差异极大的行为显然与准粒子的电导 σ_1 密切相关. 由于薄膜中共有化电子总浓度不变 $n_t = n_s + n_n$ (n_s 是超导电子浓度), 而 $X_s \propto \lambda \propto (n_s)^{-1/2}$, 不同样品的 $X_s(H_{rf})$ 随微波场的相似行为表明他们的 $n_s(H_{rf})$ 基本相同, 由此可以推出不同样品的 $n_n(H_{rf})$ 也应基本相同. 这样一来目光自然集中到准粒子散射时间常数 τ 与微波功率的关系上了. 也就是说, 实验中观察到的 $R_s(H_{rf})$ 与 $X_s(H_{rf})$ 失去关连, 应与缺陷和杂质带来的准粒子散射相关. 这种非本征机制很可能与本征机制 (金兹堡 - 朗道破对机制) 共存, 导致实验中观察到的不同的 $R_s(H_{rf})$ 、 $X_s(H_{rf})$ 行为.

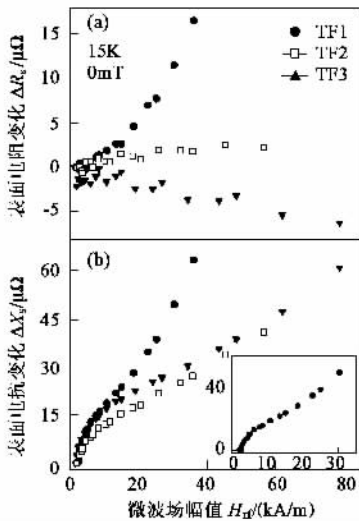


图3 三片制备方法相同, 但具体工艺过程不同的 YBCO 外延薄膜的 ΔR_s 、 ΔX_s 与微波场的关系曲线^[6]

3.2 高温超导薄膜的反常微波非线性行为

一般说来, 外加磁场对于超导电性具有抑制作用, 导致 R_s 和 X_s 随微波场 H_{rf} 上升而增加. 图 3(a) 中出现的 R_s 随微波场 H_{rf} 上升而减小的情况确属反常. 不仅如此, 人们还在 R_s 和 X_s 随温度、随直流磁场的变化中也观察到类似的反常现象, 并立即引起

了重视. 这已成为目前关于高温超导微波非线性研究的热点.

早在 1990 年代初, 人们就发现当 $T < T_c$ 时, 超导体的表面电阻随温度的变化并不是单调的, 而是在中间出现一个峰, 一些文献中把这种效应称为峰效应^[7,8]. 当时对这种反常非线性起因大致有三种观点: 一种认为与磁通线的钉扎有关 (例如孪晶缺陷对磁通线的钉扎), 随着温度的逐渐升高, 超导临界电流 J_c 逐渐增加并达到最大值, 相应超导体表面电阻达到最小值; 也有一些人认为峰效应与超导体中热激发产生的准粒子的散射有关, 峰的出现是由于高温超导体在 $T < T_c$ 时随着温度的降低, 热激活准粒子减少和准粒子散射时间增加相互竞争所致. 第三种观点指出, 稀土原子自旋和超导电子相互作用可能改变超导体的电动力学性质.

Hein 等人^[9] 不久前对在 MgO 衬底上生长的 YBCO 和 Nb 膜进行了对比研究, 发现: 在小功率下 (-60dBm), YBCO 的微波表面电阻在低于 20K 时随温度下降反常升高, 而在较大功率 (-20dBm) 时却没有这种反常 (图 4). 进一步随微波功率依赖关系的研究表明, 这种反常同时出现在 YBCO 和 Nb 膜上 (图 4 内插图). 众所周知 Nb 膜不存在任何反常非线性. 因此, 实验观察到的反常很可能出自 MgO 衬底. Hein 等人先后提出两种模型解释其物理机制: 其一认为这种反常来源于衬底中一种缺陷偶极子的弛豫机制, 其弛豫时间与微波电场相关; 后来又提出 MgO 中的杂质 (例如 HO^- 离子) 的共振吸收. 但是也有很多实验并不支持上述看法, Rao 等人^[10] 用在 LaAlO_3 衬底上制备的 YBCO 薄膜, 测量其微波特性随直流磁场的变化 (图 5). 发现 $H_{dc} \perp C$ 轴时 R_s 和 X_s 均出现反常. 大量实验结果表明, 这种由稳恒磁场引起的反常显然与依赖微波电场的偶极子弛豫机制无关, 其物理根源应当来自超导薄膜本身.

Velichko 等人^[11] 把表面电阻、表面电抗的增量 $\Delta R_s(H_{rf})$ 与 $\Delta X_s(H_{rf})$ 的反常行为关连起来研究, 提出两种类型反常: 其一, $\Delta X_s(H_{rf})$ 保持基本不变时 $\Delta R_s(H_{rf})$ 减小, 当 $\Delta X_s(H_{rf})$ 开始增加时 $\Delta R_s(H_{rf})$ 亦增加; 其二, $\Delta X_s(H_{rf})$ 保持基本不变时 $\Delta R_s(H_{rf})$ 减小, 当 $\Delta X_s(H_{rf})$ 开始增加时 $\Delta R_s(H_{rf})$ 以更快的速度减小 (图 6). 这两类反常暗示可能存在两类不同的产生反常微波非线性的物理机制: 第一种类型反常或许可以用 (衬底) 介电材料的非线性解释. 在 $\Delta R_s(H_{rf})$ 达到极小值后, $\Delta R_s(H_{rf})$ 和

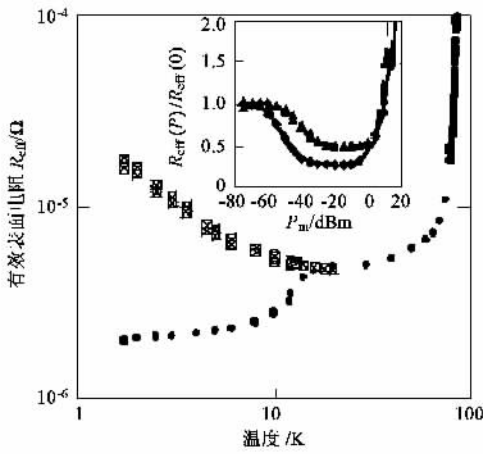


图4 在 MgO 衬底上的 YBCO 薄膜有效表面电阻随温度的变化(频率为 2.3GHz). 图中方块为 -60dBm 数据, 圆点为 -20dBm 数据. 内插图为 YBCO 和 Nb 膜(衬底均为 MgO)的有效表面电阻随微波场变化曲线^[9]

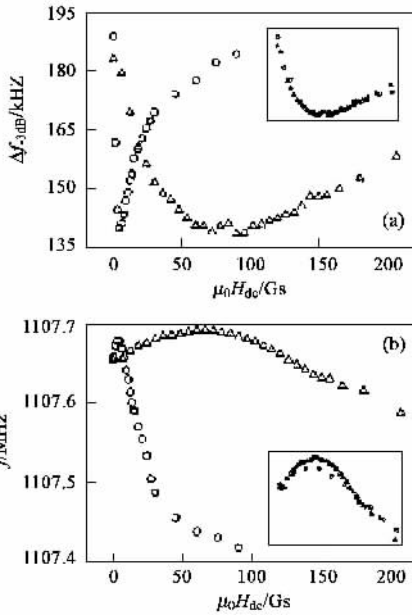


图5 用在 LaAlO₃ 衬底上制备的 YBCO 薄膜的微波特性随直流磁场的变化曲线. 图中△为 $H_{dc} \perp c$ 轴数据, ○为 $H_{dc} // c$ 轴数据. 内插图为 $H_{dc} \perp c$ 轴归一化曲线^[10]

$\Delta X_s(H_{rf})$ 一起增加,也可以用涡旋线穿入超导薄膜加以解释,但是第二种类型反常,显然与介电材料的非线性无关,只能从超导体的非线性本身寻找物理原因,目前提出的模型包括,由(直流、微波)磁场引起的磁性杂质自旋排列导致超导电性的恢复,超导颗粒旁路的弱连接导致微波电流的重新分布等.

应当指出,关于反常非线性的研究还刚刚开始,

不论是实验研究还是理论分析都还比较粗糙. 例如根据图 3、图 6 等实验结果提出的一些涉及反常非线性物理机制的观点,主要是建立在物理分析基础上的,还缺乏直接的实验证据(例如,对上述非线性行为不同的超导薄膜的形貌、微结构异同的比较,或用其他实验手段进一步揭示隐藏在不同薄膜背后的物理根源等). 这自然也为后继者下一步的工作,留下了深入发展的空间.

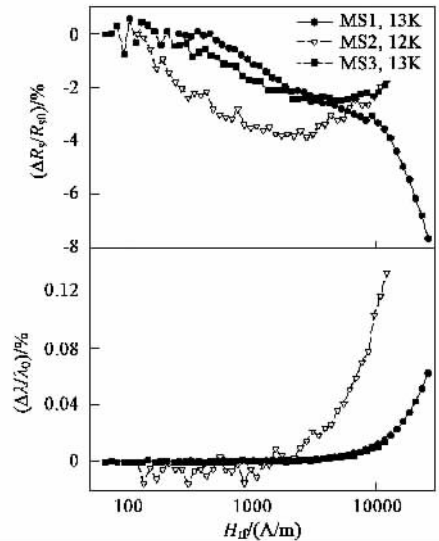


图6 三片沉积方法相同(热蒸发方法),但具体生长工艺过程不同的 YBCO(MgO 衬底来源于不同的供应商)薄膜的归一化表面电阻增量 $\Delta R_s = [R_s(H_{rf}) - R_s(0)] / R_s(0)$ 和穿透深度增量 $\Delta \lambda = [\lambda(H_{rf}) - \lambda(0)] / \lambda(0)$ 与微波磁场的关系曲线. 实验温度 13K, 频率 8GHz, 直流磁场为零^[11]

4 高次谐波的产生与交互调制畸变

高温超导的非线性特征对于微波器件的应用具有十分重要的影响. 最突出的是高次谐波的产生(harmonic generation, 即 HG)和交互调制畸变(inter-modulation distortion, 即 IMD)效应的影响. 这种效应极大地限制了许多微波器件(例如滤波器)对功率的承受能力. 人们集中了很大研究力量寻找解决对策,以消除其负面影响. 微波工程中常常将基波输出功率特性延长线与三阶交调(IMD)特性延长线的交点定义为三阶交调交截点(IP₃),作为标志器件非线性特性对功率承载能力影响的特征参量.

图 7 给出了用 YBCO 和 TI-系薄膜分别制作的 28μm 宽, 5mm 长的传输线,和分别在 70K(YBCO)和 80K(TI-系)测量的结果(1.3GHz). 可以看出,在

小功率时,两个传输线的交互调制输出功率几乎遵从同样的标度关系,但是在功率稍大时,Tl-系薄膜传输线的输出发生移动,导致 IP_3 增加大约 10dB. 实验表明,同样的传输线,YBCO 在 70K 时 IP_3 为 62dBm,相当于 0.3 W 的功率承载能力,而 Tl-系在 80K 时 IP_3 已达 75dBm,至少可以承载 4W 的功率. 以上结果似乎表明 Tl-系比 YBCO 具有更高的功率承载能力.

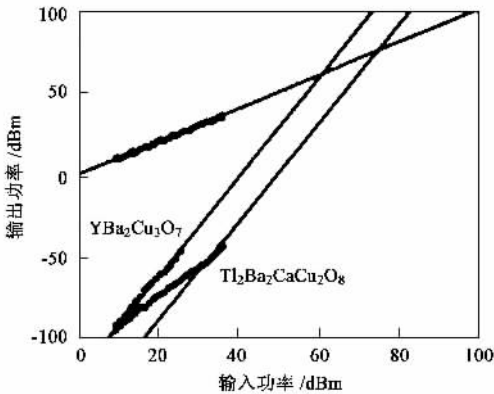


图7 两种超导薄膜交互调制效应的比较. 图中上面一条曲线为基频信号输出实验点和拟合线,下面两条曲线为交互调制信号输出实验点及拟合线. 拟合线交叉点坐标给出 IP_3 值^[12]

应当指出,除去对于器件的功率承载能力的破坏作用外,交互调制效应也有其积极的一面,可以用于制作非线性器件,例如混频器等;同时,由于这种效应包含了丰富的物理信息,和高次谐波(HG)一样,可以在小功率条件下研究超导非线性特征. HG 虽然不如 IMD 灵敏,但是比小功率下的表面阻抗测量还是要灵敏得多,这无疑为微波非线性物理研究增添了更为有力的手段.

5 微波非线性的主要来源

在对大量实验现象系统总结的基础上,人们自然要探根求源,寻找造成微波非线性的主要根源. 这样,一方面可以拓展和加深对超导电性和非线性物理的认识,一方面又可以对症下药,找到提高器件承载功率能力的技术途径. 虽然从 20 世纪 90 年代起人们就在不断努力,并取得了很大的进展,但仍然没有完全一致的结论. 由于篇幅限制,只能就几个目前文献较多关注的问题,简单介绍研究现状.

晶界. 人们早已认识到存在于高温超导薄膜晶粒边界的弱连接,可能是导致超导薄膜产生非线性

的一个重要原因. 但是具体哪些类型的晶界起主要作用,尚无定论^[13, 14]. Dimos^[15]研究了晶粒的边界角和临界电流密度的关联,他们在实验中发现了对于小角晶粒临界电流密度仅有轻微的减小,当晶粒的边界角超过 5° 时,临界电流密度快速减小. 这意味着具有较大边界角的晶粒将会引起临界电流密度的降低,从而引发超导薄膜表面电阻的增加.

杂质. 对于金属元素掺杂是否对微波非线性产生影响,文献中一直有不同意见. 文献[14]曾对分别掺有 Ca、Ni、Zn 的 YBCO 薄膜进行了对比研究,发现:低功率下的掺杂导致薄膜表面电阻线性减小,这是由于掺杂导致了局域无序,并且掺杂导致了准粒子散射时间的减小,但掺杂对散射时间的影响占次要的作用. 同时也发现:Ni、Zn 掺杂对表面电阻的非线性有重要影响,而 Ca 的掺杂对表面电阻的非线性仅有轻微影响,这是由于 Ni、Zn 被认为取代了 Cu,而 Ca 被认为取代了 Y,由此可以看出铜氧面上无序和空间变动是造成表面电阻非线性的最重要因素.

氧含量. 众所周知,氧含量与直流(包括低频)下的高温超导电性具有非常紧密的关系. Oates^[14]等人发现不同氧含量(从极度欠掺杂、欠掺杂、最佳掺杂、到过掺杂)对 YBCO 薄膜的微波非线性有极大影响,缺氧愈多,微波临界电流愈低,功率承载能力愈差,而过掺杂则明显提高了微波临界电流,改善了非线性. 可是其后的研究却得到不同的结论^[16]. 虽然也发现许多微波参量,诸如:RF 临界电流密度 J_c^{rf} , IMD 斜率 m , IP_3 等之间具有十分紧密的关连,即,具有高 J_c^{rf} 的薄膜,大都具有低 m 值,高 IP_3 . 但是,由于还有部分样品没有表现出应有的关连,因而导致作者得出结论:高温超导薄膜的微波性质和直流性质并不等价.

文献中提到的影响高温超导薄膜表面阻抗非线性产生的因素还有很多,特别是微波热效应引起了广泛的重视和讨论. 更深入的研究还包括将超导薄膜的微波特性、低频(直流)电磁性质与微结构结合起来进行,特别是将微波近场显微技术与 AFM、STM 等结合起来,成为揭示微结构与微波特性关系的最为有力的武器. 人们还作了很大努力改善薄膜的非线性行为,值得重视的是所谓对薄膜的人工修正,即通过人工引入特定缺陷(例如 Y_2O_3 柱状缺陷等),达到改善薄膜和器件的微波特性. 限于篇幅,无法在此详细介绍. 有兴趣的读者可以参看有关文献.

