

超导 $Tl_2Ba_2CaCu_2O_{8+x}$ 薄膜的太赫兹复电导率的提取^{*}

管云¹, 邢建², 季鲁², 吴敬波^{1†}, 金飏兵¹

1. 南京大学电子科学与工程学院超导电子学研究所, 南京, 210023;

2. 南开大学电子信息与光学工程学院, 天津, 300350

收稿日期: 2019-01-17; 接收日期: 2019-03-29

【摘要】 采用低温太赫兹时域光谱系统, 测试了高温超导 $Tl_2Ba_2CaCu_2O_{8+x}$ 薄膜的太赫兹透射谱, 并提取了它在不同温度下的太赫兹电导率. 研究过程中发现提取后的参数存在电导率随频率波动大、与理论值偏差较大等问题. 通过对基片厚度和太赫兹波入射角度的误差对高温超导薄膜电导率的影响进行了分析, 结果表明导致数据波动大是由于基片厚度的偏差引起的. 针对厚度差的影响, 一种矫正方法被提出, 通过对厚度的修正, 提高了数据提取的质量.

关键词: 太赫兹时域光谱技术, 高温超导薄膜, 太赫兹电导率, 数据提取的不确定性

PACS: 74. 78. -w, 78. 66. -w

DOI: 10. 13380/j. ltpl. 2019. 02. 009

The Extraction of Terahertz Complex Conductivity of Superconducting $Tl_2Ba_2CaCu_2O_{8+x}$ Film

GUAN Yun¹, XING Jian², JI Lu², WU Jingbo^{1†}, JIN Biaobing¹

1. *Research Institute of Superconductor Electronics, Nanjing University, Nanjing, 210023*

2. *College of Electronic Information and Optical Engineering, Nankai University, Tianjin 300350, China*

Received date: 2019-01-17; accepted date: 2019-03-29

【Abstract】 The transmission spectra of the high-temperature superconducting $Tl_2Ba_2CaCu_2O_{8+x}$ (TBCCO) films were measured using terahertz (THz) time domain spectroscopy (TDS), and the THz conductivities at different temperatures were extracted. It is found that the extracted complex conductivity has some problems, such as the large fluctuation of the conductivity with frequency and large deviation from theoretical values. Based on the analysis on how the errors of the substrate thickness and the incident angle of the THz wave affect the extracted complex conductivity of the TBCCO films, it is shown that the large fluctuation of the conductivity is caused by the error of the substrate thickness. Aiming at eliminating influence of the error of the substrate thickness, a correction method is proposed. Through the correction of the substrate thickness, the extracted complex conductivity of the TBCCO films gain great improvement.

Keywords: Terahertz time domain spectroscopy, High-temperature superconducting films, Complex conductivity in THz region, Uncertainty in data extraction

PACS: 74. 78. -w, 78. 66. -w

^{*} 国家自然科学基金(61701219), 江苏省自然科学基金(BK20170649)资助的课题.

[†] jbwu@nju. edu. cn

DOI: 10.13380/j.ltpl.2019.02.009

Reference method: GUAN Yun, XING Jian, JI Lu, WU Jingbo, JIN Biaobing, Low. Temp. Phys. Lett. **41**,0135 (2019)

1 引言

铜基高温超导体大多具有层状结构,层与层之间表现出约瑟夫森弱连接的特性. 1992年, Kleiner等人首次在高温超导单晶材料 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (BSCCO) 中发现了本征约瑟夫森效应^[1]. 之后, 本征约瑟夫森效应的研究受到了广泛的关注, 特别是在太赫兹波段的约瑟夫森等离子体振荡和辐射频率连续可调的太赫兹源等方面^[2-6]. BSCCO 单晶具有很强的各向异性, 是最常用来制备本征约瑟夫森结及其太赫兹辐射源的材料. 但是, 它的约瑟夫森等离子体振荡频率在 100 GHz 附近, 在太赫兹波段的低端, 而且单晶材料的尺寸较小, 限制了它的应用范围^[7]. $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ (TBCCO) 是一种具有强各向异性且转变温度超过 100 K 以上的高温超导材料, 它具有本征约瑟夫森效应, 在 TBCCO 薄膜上可以观察到较强的约瑟夫森等离子体谐振^[8-9]. 利用 TBCCO 这些优异的性质, 有望开发高性能的太赫兹器件.

为了研究 TBCCO 薄膜及其器件的特性, 对它进行太赫兹表征是不可缺少的. 太赫兹时域光谱技术是一种基于相干探测技术的太赫兹光谱系统, 通过对太赫兹脉冲的时域波形进行测量并进行傅里叶变换, 可以同时获得幅度和相位信息. 此外, 太赫兹时域光谱技术具有频带宽、信噪比高等优点, 一次测量就可以获得薄膜和器件的频谱响应, 是目前常用的测量超导薄膜太赫兹频谱特性的方法^[12-16, 19].

在本文中, 我们用低温太赫兹时域光谱系统测量了 TBCCO 薄膜的复数电导率^[17-18]. 从传输谱中提取的数据看, 电导率的频谱特性出现较大的振荡, 而且电导率的实部出现负值, 这明显与理论不符合. 对这些数据的进一步分析, 我们发现基片的厚度对复电导率提取的影响很大. 在这里我们开发了一个方法, 通过修正基片的厚度, 得到较为合理的数据. 最后还通过比较前后电导率数据和常温下的电导率数据, 进一步证明方法的有效性. 同时, 我们还分析了入射角度的影响. 并通过理论计算表明小的入射角度的误差不会导致电导率较大的误差.

2 厚度修正方法的理论推导

太赫兹传输测量的示意图如图 1 所示. 假设太赫兹脉冲通过空气、基片和包含基片的薄膜样品的

时域信号分别为 E_{air} , E_{sub} 和 E_f . 太赫兹脉冲通过基片和薄膜时, 由于 Fabry-Perot (F-P) 效应, 会在界面上发生多次反射. 实验中采用铝酸镧基片的厚度为 1 mm, 由于基片的 FP 效应引起的反射峰比主脉冲到达时间延迟 20 ps 以上, 可以通过时域加窗去除. 超导薄膜由于厚度很小, FP 效应引起的反射峰会和主脉冲交叠, 不能通过时域加窗的方法分离. 由此, 我们推导出超导薄膜样品的传输函数^[20-21]为

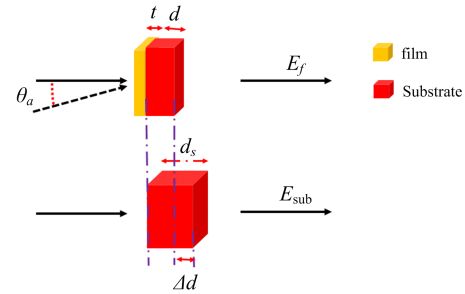


图 1 高温超导薄膜太赫兹光谱测试示意图, 其中 Δd_s 为厚度差, θ_a 表示角度误差

$$T = \frac{E_f}{E_{sub}} = \frac{T_{af} T_{fs} e^{j\omega \langle n_s d_s + n_f t + d - d_s \rangle / c}}{T_{as} e^{\frac{j\omega \langle n_s d + t \rangle}{c}} (1 - \Gamma_{fs} \Gamma_{fa} e^{\frac{j2n_f \omega t}{c}})} \quad (1)$$

其中: $T_{ij} = 2n_i / (n_i + n_j)$, $\Gamma_{ij} = (n_i - n_j) / (n_i + n_j)$ 分别是 i 区域入射到 j 区域时的透射系数和反射系数. n_i 是 i 区域的相对折射率, i, j 可以为空气(a), 基片(s)和薄膜(f), ω 为频率, d 为衬底厚度, d_s 参考基片厚度, c 为真空中的光速. t 为薄膜厚度. 如果参数满足 $d = d_s$, $2n_f \omega t / c \ll 1$, $n_f \gg n_s > 1$ 的条件, 其中 $n_f = (1 + j\sigma(\omega) / (\epsilon_0 \omega))^{1/2}$, $Z_0 = 1 / (\epsilon_0 c)$, ϵ_0 为真空介电常数, 公式(1)可以化简得

$$T = \frac{(1 + n_s)}{(n_s + 1) - Z_0 t \sigma(\omega)} = \rho(\omega) e^{j\varphi(\omega)} \quad (2)$$

其中 $\rho(\omega)$ 为传输函数的振幅, $\varphi(\omega)$ 为传输函数的相位, $\sigma(\omega)$ 为电导率.

于是:

$$\begin{aligned} \sigma(\omega) &= \frac{1}{-Z_0 t} \left\{ \frac{(1 + n_s)}{\rho(\omega)} e^{-j\varphi(\omega)} - (n_s + 1) \right\} \\ &= \frac{A}{B} \left\{ \frac{1}{\rho(\omega)} e^{-j\varphi(\omega)} - 1 \right\} \end{aligned} \quad (3)$$

其中 $A = 1 + n_s$, $B = -Z_0 t$.

然而, 在实际测量中 $d = d_s$ 的条件往往并不满足, 并会由此带来误差. 我们考虑由于厚度引起的误差 $\Delta d = d - d_s$, 并根据公式(1)推导得电导率的修

正公式为:

$$\begin{aligned} \sigma_1(\omega) &= \frac{A}{B} \left\{ \frac{1}{\rho(\omega)} e^{-j\varphi(\omega)} e^{\frac{j(n_s-1)\omega\Delta d}{c}} - 1 \right\} \\ &= \frac{A}{B} \left\{ \frac{1}{\rho(\omega)} e^{-j\varphi_1} - 1 \right\} \end{aligned} \quad (4)$$

考虑厚度差后的修正传输函数为:

$$T_1 = \frac{(1+n_s)}{(n_s+1) - Z_0 t \sigma(\omega)} = \rho(\omega) e^{j\varphi(\omega)} e^{-j\varphi_1} \quad (5)$$

其中由于厚度误差引起的相位差为 $\varphi_1 = (n_s - 1)\omega\Delta d/c$. 将(4)和(3)相减并化简可得由厚度差引起的电导率误差:

$$\begin{aligned} &\sigma_1(\omega) - \sigma(\omega) \\ &= (\sigma(\varphi_1, \omega) + \frac{A}{B})(\cos\varphi_1 - 1 - j\sin\varphi_1) \end{aligned} \quad (6)$$

取(6)式实部,利用泰勒级数展开后得:

$$\begin{aligned} &\text{real}(\sigma_1(\omega) - \sigma(\omega)) \\ &= \left\{ \text{real}(\sigma(\varphi_1, \omega)) + \frac{A}{B} \right\} \left(-\frac{\varphi_1^2}{2} + \frac{\varphi_1^4}{24} - \dots \right) \\ &\quad + \text{imag}(\sigma(\varphi_1, \omega)) \left(\varphi_1 - \frac{\varphi_1^3}{6} + \dots \right) \end{aligned} \quad (7)$$

为了提取出正确的厚度差,我们要确定正确的相位差,为此,我们在(2)式的传输谱相位 $\varphi(\omega)$ 的基础上加上 $\Delta\varphi = (n_s - 1)\omega\Delta d_1/c$,我们令 Δd_1 从 0 开始变化,当 Δd_1 变化到实际厚度差 Δd 时,从(2)式计算的电导率即为实际正确的电导率. 下面进一步说明其原理.

当我们调整(2)式中的相位 $\varphi(\omega)$,即将(2)中相位变为 $\varphi(\omega) + \Delta\varphi$,其中 $\Delta\varphi = (n_s - 1)\omega\Delta d_1/c$, Δd_1 从 0 开始变化到 Δd . 此时,(2)式中修正后的传输谱 T 与(5)式中考虑厚度差时的传输谱 T_1 相等. 二者相应的相位差 $\varphi_1 = 0$; 而从(7)式可以知道,当电导率虚部为 0,而实部很大时,误差函数是偶函数,在 $\varphi_1 = 0$ 处取得极小值. 在实际中, TBCCO 薄膜在正常态时电导率实部很大,虚部很小时,我们可以忽略虚部的影响. 这为我们筛选出误差最小点提供了理论依据.

3 实验测量和数据处理

我们采用磁控溅射在 1 mm 厚的铝酸镧基片上生长 TBCCO 薄膜,薄膜厚度为 200 nm,超导转变温度为 100 K. 我们采用低温太赫兹时域光谱,对不同温度下样品和铝酸镧基片的太赫兹透射谱进行测试. 样品和基片都放在具有太赫兹光学窗口的液氦连续流杜瓦中,通过液氦制冷并调节冷头温度,我们测试了样品和基片在 4~300 K 温度区间的透射谱. 图 2 是由实验测得数据根据公式(3)式计算得到的复电导率数据,我们发现电导率实部在常温下出现负值,且 20 K 时电导率实部多了很多振荡. 我们猜测可能原因是测量中样品衬底与参考基片的厚度差引起的.

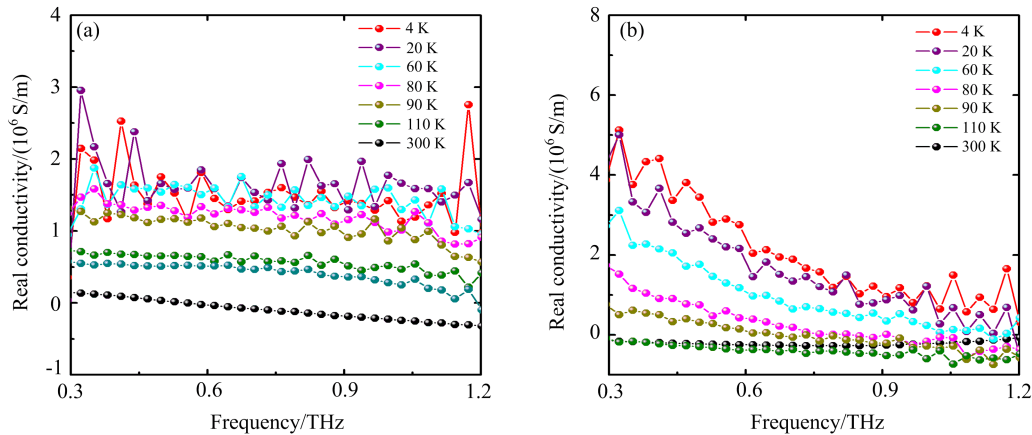


图 2 根据 TBCCO 薄膜的太赫兹传输谱数据计算出的不同温度下的太赫兹电导率实部(a)和虚部(b)

根据第二部分的讨论,我们可以通过厚度的修正减少这种不合理性. 常温下, TBCCO 膜的电导率特性同金属类似,太赫兹频段电导率实部较平滑且虚部趋于 0. 通过上面对(5~7)式的分析知道,当我

们改变相位差 φ_1 时,电导率误差函数实部在正确厚度差附近是极小值点. 从而通过在厚度差最大区间里搜索,我们可以确定厚度差. 通过对实际情况的分析, Δd 最大区间大约为 $[-50 \mu\text{m}, 50 \mu\text{m}]$,把

$[-50 \mu\text{m}, 50 \mu\text{m}]$ 平均分成 10 份小区间,在每个区间端点先算出常温下 TBCCO 膜的电导率的实部和虚部.然后计算实部标准差,找出使得实部标准差最小的那个点,再选择包含该点的区间段,继续分成 10 份,然后重复上面的过程.直至实部标准差前后两次之间相差不大,停止循环,找出使得实部标准差达到最小值对应的厚度差.利用得到的厚度差代入公式(2)计算,即可得到考虑了该厚度差修正后的电导率.图 3 给出了室温电导率实部标准差随 Δd 变化的关系.从图 3 可以看出,当 $\Delta d = -6 \mu\text{m}$ 时,室温下电导率的实部的标准差最小.

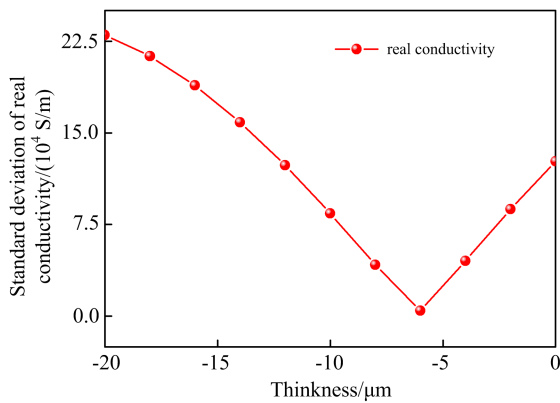


图 3 二次循环搜索后得到的室温下电导率实部的标准偏差与厚度的关系.当 $\Delta d = -6 \mu\text{m}$ 时标准偏差最小

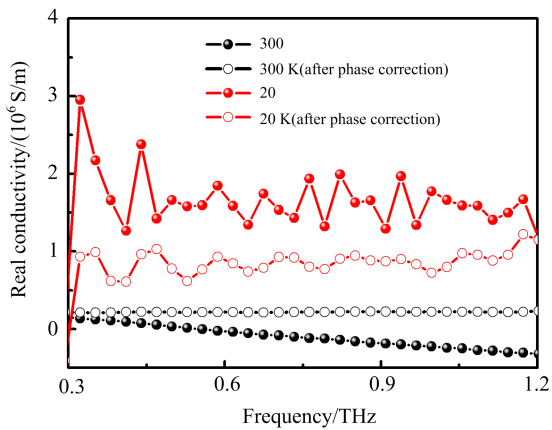


图 4 4 K 和 300 K 下相位修正前后的电导率实部

图 4 给出了在 20 K 和 300 K 时,经过修正和未经过基片厚度修正的结果.从温度为 300 K 的数据看,修正后电导率的实部与频率无关,且在 0.3—1.2 THz 范围内都是正值,更符合实际情况.对于温度在 20 K 时的数据,考虑基片厚度修正后,电导率实部随频率振荡的行为基本消失,近似为一条直

线^[22].因此,通过厚度修正,可极大地改善从太赫兹传输谱中提取复电导率的数据质量.

最后,我们把厚度修正引入到复电导率谱的提取中,结果如图 5 所示.复电导率的实部在 4 K 时与频率的关系仍然有较大的波动.这可能是由于在低温下,透射的太赫兹信号较小,原始数据的信噪比较低所产生的.当温度较高时,透射的太赫兹信号变强,数据的信噪比提高,经过厚度修正后数据质量改善明显.电导率的虚部曲线经过厚度修正后变得较为光滑,从图 5(b)虚线可以看出修正后电导率虚部在低温时的数据显示出较好的与频率成反比的关系.有这个关系,根据已有的文献和理论^[10,11],由 $\sigma_s = -j \cdot 1/(\omega\mu\lambda_L^2)$ 可拟合得到 TBCCO 薄膜在 4 K 时的穿透深度是 263.8 nm,由 $(\lambda_L(0)/\lambda_L(T))^2 = 1 - (T/T_c)^4$ 应用最小二乘法拟合不同温度下的穿透深度得到 0 K 时的穿透深度是 $285 \pm 11.5 \text{ nm}$,由此穿透深度计算得出的电导率虚部如图 5(b)虚线所示,这与其它组的测量结果一致^[22].

4 入射角度的影响

在上面的讨论中,传输系数的公式是针对太赫兹波垂直入射的情况.在实际测量中,太赫兹波的入射角度会存在一点偏差.下面,我们分析了入射角度的偏差对数据提取的影响.在 TM 入射的情况,电导率公式变为:

$$\sigma_2(\omega) = -\epsilon_0 \left\{ \frac{c \cos\theta_f}{t} \left\{ \left(\frac{n_s}{\cos\theta_s} + \frac{1}{\cos\theta_a} \right) - \frac{\left(\frac{1}{\cos\theta_a} + \frac{n_s}{\cos\theta_s} \right)}{\rho(\omega)} e^{-j\varphi(\omega)} \right\} \right\} \quad (8)$$

其中, ϵ_0 为真空介电常数. θ_a 为空气中的入射太赫兹光的入射角, θ_s 为衬底中太赫兹光线的折射角, θ_f 为薄膜中太赫兹光的折射角.将式(8)与式(3)相减,误差函数如下:

$$\sigma_2(\omega) - \sigma(\omega) = \frac{1}{Z_0 t} \left\{ \left(n_s \left(1 - \frac{\cos\theta_f}{\cos\theta_s} \right) + \left(1 - \frac{\cos\theta_f}{\cos\theta_a} \right) + \frac{\left(\frac{\cos\theta_f}{\cos\theta_a} - 1 \right) + n_s \left(\frac{\cos\theta_f}{\cos\theta_s} - 1 \right)}{\rho(\omega)} e^{-j\varphi(\omega)} \right\} \quad (9)$$

令

$$\frac{1}{\rho(\omega)} e^{-j\varphi(\omega)} = K, \quad \frac{1}{Z_0 t} = P \quad (10)$$

由折射率定律和上式(9)联立化简得:

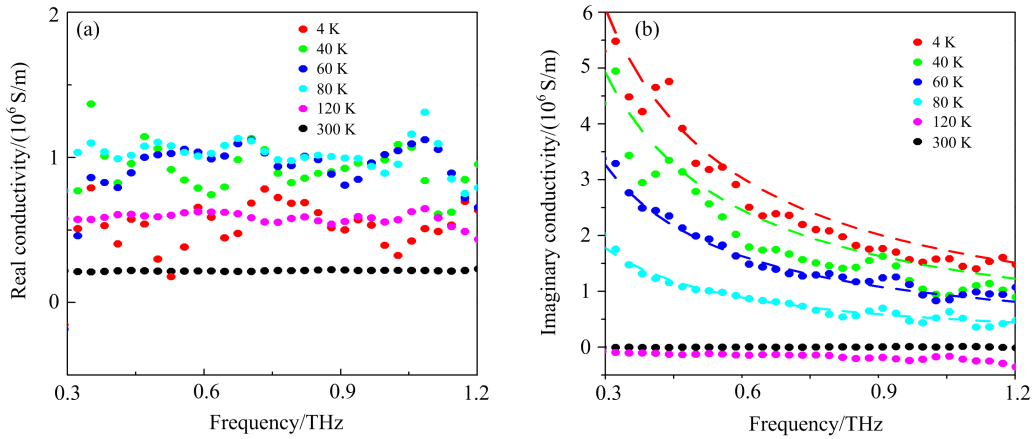


图5 厚度误差修正后得到的不同温度下的电导率(圆点)实部(a)和虚部(b)随频率变化的关系, 图(b)中虚线为根据电导率虚部与穿透深度的关系拟合得到的曲线

$$\frac{d(\sigma_2(\omega) - \sigma(\omega))}{d\theta_a} = P \left\{ \left(\frac{(n_s)^2}{\sqrt{(n_s)^2 - (\sin\theta_a)^2}} + \frac{1}{\cos\theta_a} \right) \frac{\sin\theta_a}{n_f} (1 - K) \frac{n_a \cos\theta_a}{\sqrt{(n_f)^2 - (n_a \sin\theta_a)^2}} \right. \\ \left. + (K - 1) n_s \frac{\sin\theta_a n_s}{n_f \frac{n_a \cos\theta_a}{\sqrt{(n_f)^2 - (n_a \sin\theta_a)^2}}} \left(\frac{n_a \cos\theta_a}{\sqrt{(n_s)^2 - (n_a \sin\theta_a)^2}} \right)^3 \right. \\ \left. + (K - 1) \frac{\tan\theta_a}{n_f \frac{n_a \cos\theta_a}{\sqrt{(n_f)^2 - (n_a \sin\theta_a)^2}}} \right\} \quad (11)$$

在本实验中,各参数选取如下: $n_a = 1, \theta_a = 0, n_s = 5, n_f = (1 + 36\pi(2 + 4j) \times 10^{15} / \omega)^{1/2}, P = (1 / Z_0 t) = 13263, K = ((n_s + 1) + Z_0 t \sigma(\omega)) / (n_s + 1), \sigma(\omega) = (2 + 4j) \times 10^6, t = 200 \text{ nm}$,利用(10)式,在0.2—1.2 THz用4阶泰勒级数近似原函数得:

$$\sigma_2(\omega) - \sigma(\omega) \approx (4 + 8j) \times 10^5 (\Delta\theta_a)^2 + (1.224 + 2.5j) \times 10^6 (\Delta\theta_a)^4 \quad (12)$$

这个函数是关于角度的偶函数,奇数次导数全为0.

如果角度为5度偏差,由(12)式得:

$$\sigma_2(\omega) - \sigma(\omega) \approx (3.04 + 6.08j) \times 10^3 + (7.09 + 14.5j) \times 10 \quad (13)$$

由这个角度差引起的电导率误差相比电导率的数值 $(2 + 4j) \times 10^6$ 小了1000倍左右.对于我们的太赫兹时域光谱系统,入射太赫兹波的角度误差在

± 10 度之内.我们的计算结果表明, ± 10 度偏差下,角度误差引起的电导率相对误差小于3%,可以忽略.

5 结 论

我们利用太赫兹时域光谱技术测量高温超导薄膜TBCCO的传输谱,从而提取出它的复电导率.在提取过程中,我们发展了一个基片厚度修正的方法,利用该方法,可以显著减少提取后数据的波动性,使其更符合真实情况,从而便于我们进行太赫兹频段的物性分析.我们还分析了入射角度偏离正入射情况下对太赫兹电导率的影响,结果表明小的角度偏离对结果影响可以忽略.我们的方法对于改善实验数据提取有重要意义.

参 考 文 献

- [1] R. Kleiner, F. Steinmeyer, G. Kunkel, P. Müller, *Phys. Rev. Lett.*, **68**(1992), 2394.
- [2] H. B. Wang, P. H. Wu, T. Yamashita, *Phys. Rev. Lett.*, **87**(2001), 107002.
- [3] S. Savel'ev, V. Yampol'skii, F. Nori, *Phys. Rev. Lett.*, **95**(2005), 187002.
- [4] S. Savel'ev, A. L. Rakhmanov, V. A. Yampol'skii, F. Nori, *Nat. Phys.*, **2**(2006), 521.
- [5] L. Ozyuzer, A. E. Koshelev, C. Kurter, N. Gopalsami, Q. Li, M. Tachiki, K. Kadowaki, T. Yamamoto, H. Minami, H. Yamaguchi, T. Tachiki, K. E. Gray, W. K. Kwok, U. Welp, *Science*, **318**(2007), 1291.
- [6] H. B. Wang, S. Guénon, B. Gross, J. Yuan, Z. G. Jiang, Y. Y. Zhong, M. Grünzweig, A. Iishi, P. H. Wu, T. Hatanoto, D. Koelle, R. Kleiner, *Phys. Rev. Lett.*, **105**(2010), 057002.
- [7] R. Mallozzi, J. Corson, J. Orenstein, J. N. Eckstein, I. Bozovic, *J. Phys. Chem. Solids*, **59**(1998), 2095.
- [8] V. K. Thorsmølle, R. D. Averitt, M. P. Maley, L. N. Bulaevskii, C. Helm, A. J. Taylor, *Opt. Lett.*, **26**(2001), 1292.
- [9] V. K. Thorsmølle, R. D. Averitt, M. P. Maley, L. N. Bulaevskii, C. Helm, A. J. Taylor, *Physica B*, **312** - **313**(2002), 84.
- [10] S. D. Brorson, R. Buhleier, J. O. White, I. E. Trofimov, H. — U. Habermeier, and J. Kuhl, *Phys. Rev. B*, **49**(1994), 6185
- [11] C. Jaekel, C. Waschke, H. G. Roskos, H. Kurz, *Appl. Phys. Lett.*, **64**(1994), 3326
- [12] T. D. Dorney, R. G. Baraiuk, D. M. Mittleman, *J. Opt. Soc. Am. A*, **18**(2001), 1562.
- [13] I. Pupeza, R. Wilk, M. Koch, *Optics Express*, **15**(2007), 4335.
- [14] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. Van Exter, C. Fattinger, *J. Opt. Soc. Am. B*, **7**(1990), 2006.
- [15] Martin C. Nuss, K. W. Goossen, J. P. Gordon, *J. Appl. Phys.*, **70**(1991), 2238
- [16] E. Barta, *Infrared Physics*, **17**(1977), 111.
- [17] 方容川, 2001 固体光谱学. (合肥, 中国科学技术大学出版社.).
- [18] M. Born, E. Wolf, 1980 *Principles of Optics*. (Cambridge, UK: Cambridge University).
- [19] R. X. Wu, M. Qian, *Rev. Sci. Instrum.*, **68**, (1997), 155.
- [20] P. H. Wu, Q. Min, *J. Appl. Phys.*, **71**(1992), 5550.
- [21] B. Ferguson, X. C. Zhang, *Nature Materials*, **1**(2002), 26.
- [22] M. A. Khazan. 2002 博士学位论文. (Hamburg Universität, Hamburg).