

# 利用脉冲激光沉积技术在双轴织构的 Ni 基带上 外延 $\text{CeO}_2$ 薄膜\*

刘 震<sup>1)</sup> 王淑芳<sup>2)†</sup> 赵嵩卿<sup>1)</sup> 周岳亮<sup>1)</sup>

1) 中国科学院物理研究所, 北京 100080)

2) 河北大学物理科学与技术学院, 保定 071002)

(2005 年 3 月 24 日收到, 2005 年 7 月 13 日收到修改稿)

利用脉冲激光沉积技术在氢还原气氛下成功地在双轴织构的 Ni 基带上外延了高质量的  $\text{CeO}_2$  薄膜. x 射线衍射  $\theta-2\theta$  扫描和  $\omega$  扫描结果表明,  $\text{CeO}_2$  薄膜在 Ni 基带上呈 c 轴方向生长, 存在很强的平面外织构. 极图和  $\varphi$  扫描显示它具有良好的平面内织构. Ni 基片上织构的  $\text{CeO}_2$  薄膜为进一步在其上外延高质量的  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  超导薄膜提供了很好的模板.

关键词: 双轴织构的 Ni 基带,  $\text{CeO}_2$  薄膜, 脉冲激光沉积

PACC: 6855, 7360H, 8115I, 7470V

## 1. 引 言

轧制辅助双轴织构(rolling assisted biaxially textured substrates)技术是近年来发展起来的一种制备  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  (YBCO) 第二代高温超导带材的方法<sup>[1,2]</sup>. 该技术的关键之一就是在具有双轴织构的金属基带(如 Ni)上先制备一层或几层缓冲层以阻止基带与 YBCO 薄膜之间的相互反应, 然后再在这种缓冲层上继续外延 YBCO 薄膜.  $\text{CeO}_2$  因其晶格常数与 YBCO 匹配, 并且具有良好的化学稳定性, 被认为是在金属基带上外延 YBCO 薄膜的一种非常好的缓冲层材料. 但在  $\text{CeO}_2$  制备过程中, 因为受 Ni 基带表面氧化的干扰, 很难制备出不含 NiO 杂相的外延薄膜. 我们研究小组曾利用离子束辅助的脉冲激光沉积技术在双轴织构 Ni 基带上成功制备出了  $\text{CeO}_2$  外延薄膜, 但这种方法需要在反应室中安装一个离子枪, 使实验复杂化, 且不能完全阻止 NiO 的形成<sup>[3,4]</sup>. 在本工作中, 我们在没有离子束辅助的条件下, 借助氢还原的方法利用脉冲激光沉积技术在双轴织构的 Ni 基带上成功地外延了不含 NiO 杂相的

$\text{CeO}_2$  薄膜, 并在此基础上外延了优质的 YBCO 超导薄膜.

## 2. 实验条件

本工作使用的 Ni 基片由西北有色金属研究院超导研究所提供. 电解得到的 Ni 块经冷轧后在  $2 \times 10^{-3}$  Pa 真空中退火 4 h, 退火温度为 1000 °C, 得到的 Ni 基片具有强的 (002) 取向, 其强度为次强峰 N(111) 的 100 倍. x 射线极图显示它具有良好的平面内织构. 实验中所用的基片尺寸为  $7 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 0.2 \text{ mm}$ , 经丙酮、酒精超声清洗后放入反应室. 薄膜沉积之前首先将反应室真空抽至  $2 \times 10^{-4}$  Pa, 通入 100 Pa 的 4%  $\text{H}_2 + 96\%$  Ar 混合气体, 在 650 °C 下对基片退火 1 h, 以除去基片表面的 NiO. 然后将反应室中的气压降至 1 Pa, 开始沉积  $\text{CeO}_2$  薄膜, 沉积参量见表 1 所示. 薄膜的平面外织构(out-of-plane texture)和平面内织构(in-plane texture)信息分别由 x 射线衍射  $\theta-2\theta$  扫描、 $\omega$  扫描、极图和  $\varphi$  扫描测试得到.

\* 国家重点基础研究发展规划(批准号 2006CB61005)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: wsf@aphy.iphy.ac.cn

表 1 CeO<sub>2</sub> 薄膜制备参量取值

参 量	取 值
激光能量/mJ	230
激光频率/Hz	3
工作气体 H <sub>2</sub> :Ar	4:96
沉积气压/Pa	1.0—1.5
基片温度/℃	650
靶距/mm	50

### 3. 实验结果及讨论

我们分别在基片温度为 350, 450, 550, 650, 750 °C 下沉积了 CeO<sub>2</sub> 薄膜. 实验发现, 沉积温度对薄膜的取向有很大的影响. 650 °C 下沉积的薄膜为 (001) 取向, 而其他温度下沉积的薄膜除了 (001) 取向外均有不同程度的 (111) 取向. 另外, 工作气压对薄膜的生长也起着至关重要的作用, 当气压仅在 1 Pa 左右变动时, 沉积的薄膜为 *c* 轴取向. 图 1 为 650 °C, 1 Pa 时在织构的 Ni 基片上沉积的 CeO<sub>2</sub> 薄膜  $\theta-2\theta$  扫描图谱. 从图 1 可以看出, 除了基片峰外, 仅在  $2\theta$  约为 33.1° 和 69.4° 观测到两个峰, 分别对应 CeO<sub>2</sub>(002) 和 CeO<sub>2</sub>(004) 的衍射峰, 很强的 (002) 和 (004) 峰表明我们制备的薄膜具有很强的 *c* 轴结构. 在图 1 中没有观测到任何 NiO 的杂相峰, 可见工作气体中的 H<sub>2</sub> 在沉积薄膜过程中可以有效地阻止 Ni 基片的氧化.

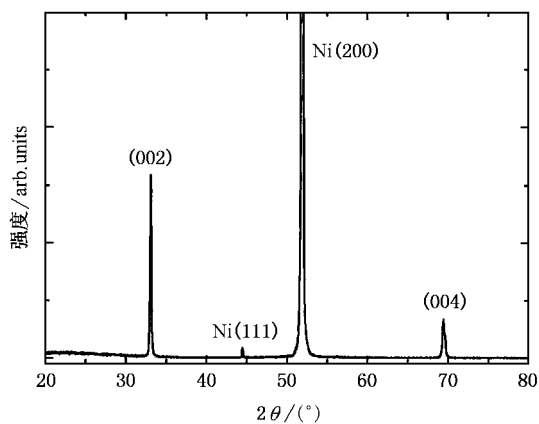
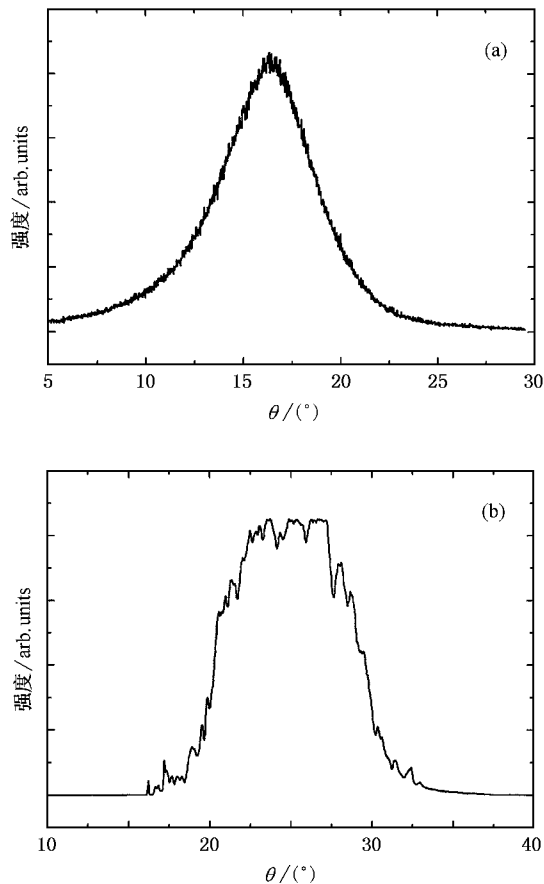
图 1 650 °C, 1 Pa 时在 Ni 基片上制备的 CeO<sub>2</sub> 薄膜的  $\theta-2\theta$  扫描

图 2(a) 为 CeO<sub>2</sub>(002) 峰的摇摆曲线, 为了比较, 我们同时也给出了基片 Ni(002) 峰的摇摆曲线 (见图 2(b)). Ni(002) 峰的摇摆曲线很不光滑, 分布有许

多分裂的小峰, 这是由于 Ni 基片粗糙的表面引起的<sup>[5]</sup>. 沉积一层 CeO<sub>2</sub> 后可以显著地改善基片表面的粗糙状况. Ni(002) 和 CeO<sub>2</sub>(002) 的峰值半高宽 (FWHM) 分别约为 7.0° 和 5.2°, 表明一定厚度的 CeO<sub>2</sub> 薄膜可以改进材料的平面外织构.

图 2 CeO<sub>2</sub>(002) 和 Ni(002) 峰的摇摆曲线 (a) CeO<sub>2</sub>(002), FWHM 为 5.2° (b) Ni(002), FWHM 为 7.0°

为了得到薄膜在平面内的织构信息, 我们对样品进行了 x 射线衍射  $\varphi$  扫描测试. 图 3 给出了 Ni 基片 (111) 方向和其上沉积的 CeO<sub>2</sub> 薄膜 (111) 方向的  $\varphi$  扫描曲线, 薄膜厚度约为 40 nm. 由图 3 可知, CeO<sub>2</sub> 薄膜很好地“继承”了 Ni 基片的平面内织构. 图 3(a) 中 CeO<sub>2</sub>(111)  $\varphi$  扫描的 FWHM 约为 11°, 较大的 FWHM 可能源于薄膜的厚度较薄.

图 4 给出了在 Ni 基片上制备的 CeO<sub>2</sub> 薄膜 (111) 方向的极图. 图 4 显示 4 个强度分布均匀的对称斑, 再次证明我们制备的 CeO<sub>2</sub> 薄膜具有很好的平面内织构.

在制备 Ni/CeO<sub>2</sub>/Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub>(YSZ)/YBCO 或 Ni/CeO<sub>2</sub>/YSZ/CeO<sub>2</sub>/YBCO 等多层结构时, 第一层缓冲

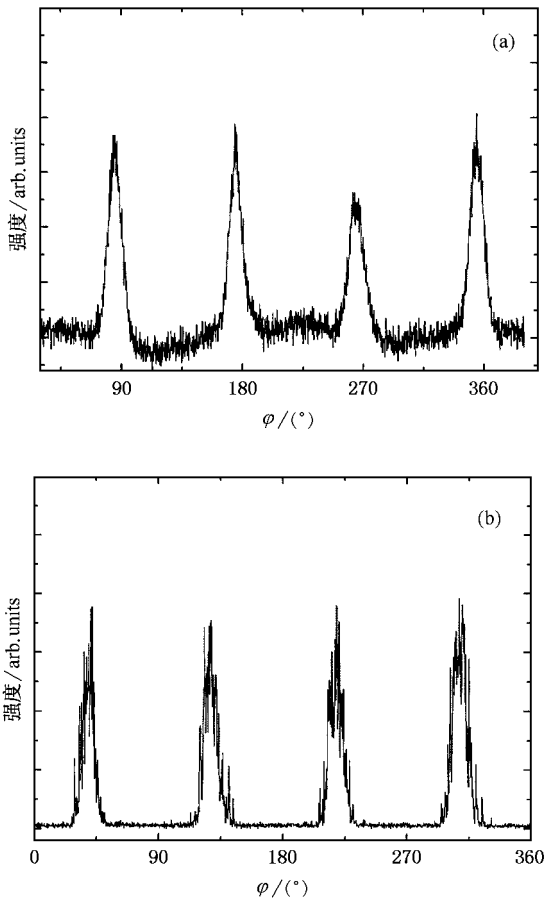


图3  $\text{CeO}_2(111)$  和  $\text{Ni}(111)$  的  $\varphi$  扫描 (a)  $\text{CeO}_2(111)$ , FWHM 为  $11^\circ$  (b)  $\text{Ni}(111)$ , FWHM 为  $10^\circ$

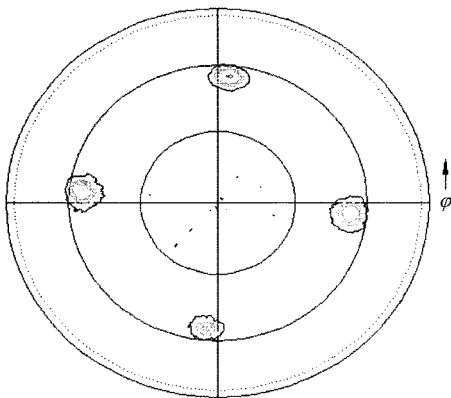


图4 在 Ni 基带上制备的 40 nm 的  $\text{CeO}_2$  薄膜  $(111)$  方向的极图

层  $\text{CeO}_2$  的生长状况对于后继薄膜的制备起着关键

性的作用,一旦成功地在 Ni 基片上外延出  $\text{CeO}_2$  薄膜,其他几层的外延生长就相对容易了.因此, Ni 基片上织构的  $\text{CeO}_2$  薄膜为进一步在其上外延高质量的 YBCO 超导薄膜提供了很好的模板(template).我们在上述 40 nm 的  $\text{CeO}_2$  薄膜上用脉冲激光沉积技术继续沉积了  $\text{YSZ}(400\text{ nm})/\text{CeO}_2(30\text{ nm})/\text{YBCO}(600\text{ nm})$  结构,得到的样品的  $\theta-2\theta$  扫描见图 5 所示.从图 5 可以看出,随后沉积的 YSZ 薄膜和 YBCO 薄膜都呈高度的  $c$  轴织构.  $\text{YSZ}(111)$  和  $\text{YBCO}(103)$   $\varphi$  扫描测试表明, YSZ 薄膜和 YBCO 薄膜都具有很好的平面内织构.四引线法测试显示,最后一层 YBCO 薄膜的超导转变温度为 91 K,自场 77 K 时 YBCO 超导薄膜的临界电流密度大于  $1\text{ MA}/\text{cm}^2$ .

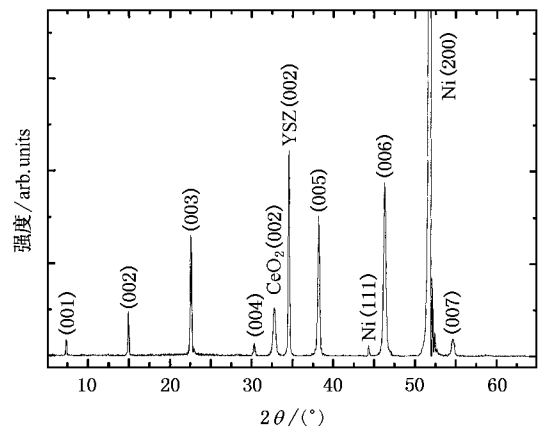


图5 Ni/ $\text{CeO}_2$ / $\text{YSZ}/\text{CeO}_2$ / $\text{YBCO}$  x 射线衍射  $\theta-2\theta$  扫描

## 4. 结 论

利用脉冲激光沉积技术在氢还原气氛下在立方织构的 Ni 基带上成功地外延了  $\text{CeO}_2$  薄膜.分别采用 x 射线衍射  $\theta-2\theta$  扫描、 $\omega$  扫描、 $\varphi$  扫描和极图研究了 Ni 基带上  $\text{CeO}_2$  薄膜的  $c$  轴织构和平面内织构信息.结果表明:在工作气压约为 1 Pa、基片温度为  $650^\circ\text{C}$  时,在 Ni 基带上制备的  $\text{CeO}_2$  薄膜不含有 NiO 杂相,且具有良好的平面外织构和平面内织构.外延的  $\text{CeO}_2$  薄膜为我们进一步利用脉冲激光沉积技术外延高质量的 YBCO 超导薄膜提供了非常好的模板.



- [ 1 ] Goyal A ,Norton D P , Budai J D *et al* 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 1718  
1795
- [ 2 ] Norton D P ,Goyal A ,Budai J D *et al* 1996 *Science* **274** 755
- [ 3 ] Wang R P ,Xiong X M ,Guo X X *et al* 1998 *Chin. Sci. Bull.* **43**
- [ 4 ] Wang R P ,Zhou Y L ,Pan S H *et al* 1998 *J. Appl. Phys.* **84** 1994
- [ 5 ] Chen J ,Parilla P A ,Bhattacharya R N *et al* 2004 *Jpn. J. Appl. Phys.* **43** 6040

## Pulsed laser deposition of epitaxial CeO<sub>2</sub> thin films on biaxially textured Ni substrate\*

Liu Zhen<sup>1)</sup> Wang Shu-Fang<sup>2)†</sup> Zhao Song-Qing<sup>1)</sup> Zhou Yue-Liang<sup>1)</sup>

1 *† Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 ,China )*

2 *† College of Physics Science and Technology , Hebei University , Baoding 071002 ,China )*

( Received 24 March 2005 ; revised manuscript received 13 July 2005 )

### Abstract

High-quality epitaxial CeO<sub>2</sub> thin films were fabricated on the biaxially textured Ni substrates by pulsed laser deposition using a gas mixture of 4% H<sub>2</sub> and 96% Ar. X-ray diffraction  $\theta-2\theta$  scan and  $\omega$ -scan indicate the CeO<sub>2</sub> thin films are *c*-axis textured , and  $\varphi$ -scan and pole figure of the films reveal the presence of good in-plane texture. The biaxially textured CeO<sub>2</sub> films provide a good template for the fabrication of YBCO conductors.

**Keywords** : biaxially textured Ni substrate , CeO<sub>2</sub> thin films , pulsed laser deposition

**PACC** : 6855 , 7360H , 81151 , 7470V

\* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China ( Grant No. 2006CB601005 ).

† Corresponding author. E-mail : wsf@aphy.iphy.ac.cn