

利用脉冲激光沉积技术在双轴织构的 Ni 基带上 外延 CeO_2 薄膜*

刘 震¹⁾ 王淑芳^{2)†} 赵嵩卿¹⁾ 周岳亮¹⁾

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 CeO_2 薄膜. x 射线衍射 $\theta-2\theta$ 扫描和 ω 扫描结果表明, 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 φ 扫描显示它具有良好的平面内织构. Ni 基片上织构的 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, 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^[1,2]. 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. 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 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 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^[3,4]. 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

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 2×10^{-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 2×10^{-4} Pa, 通入 100 Pa 的 4% $\text{H}_2 + 96\% \text{ Ar}$ 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 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、 ω 扫描、极图和 φ 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 CeO₂ 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 ₂ :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 ℃下沉积了 CeO₂ 薄膜. 实验发现, 沉积温度对薄膜的取向有很大的影响. 650 ℃下沉积的薄膜为(00 l)取向, 而其他温度下沉积的薄膜除了(00 l)取向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 ℃, 1 Pa 时在织构的 Ni 基片上沉积的 CeO₂ 薄膜 $\theta-2\theta$ 扫描图谱. 从图 1 可以看出, 除了基片峰外, 仅在 2θ 约为 33.1° 和 69.4° 观测到两个峰, 分别对应 CeO₂(002) 和 CeO₂(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 H₂ 在沉积薄膜过程中可以有效地阻止 Ni 基片的氧化.

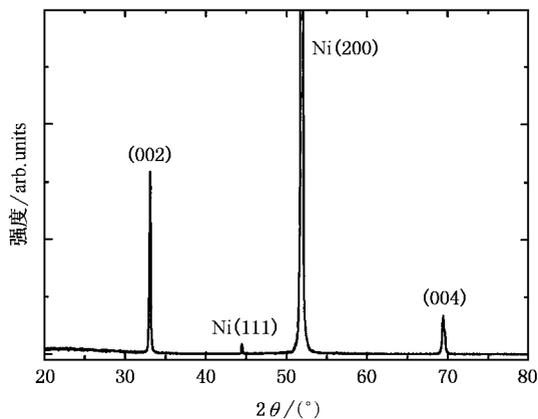
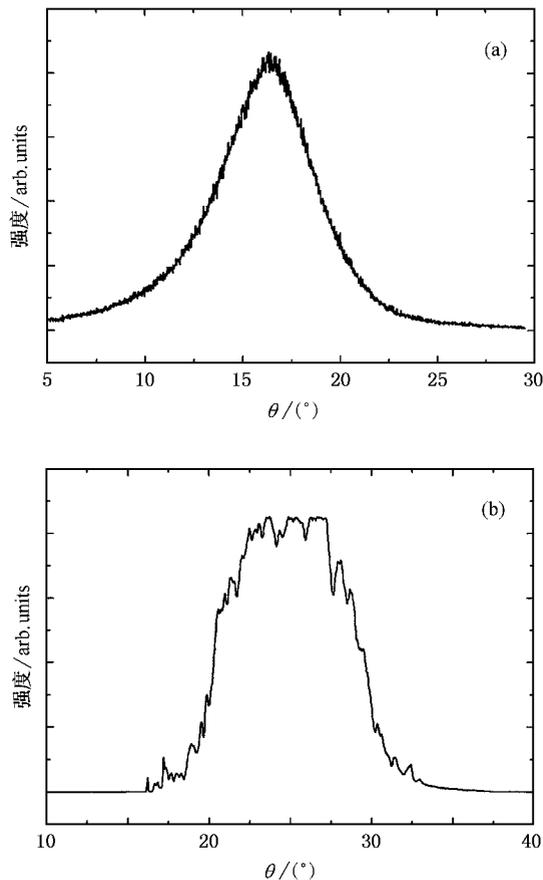
图 1 650 ℃, 1 Pa 时在 Ni 基片上制备的 CeO₂ 薄膜的 $\theta-2\theta$ 扫描

图 2(a) 为 CeO₂(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^[5]. 沉积一层 CeO₂ 后可以显著地改善基片表面的粗糙状况. Ni(002) 和 CeO₂(002) 的峰值半高宽 (FWHM) 分别约为 7.0° 和 5.2°, 表明一定厚度的 CeO₂ 薄膜可以改进材料的平面外织构.

图 2 CeO₂(002) 和 Ni(002) 峰的摇摆曲线 (a) CeO₂(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 φ 扫描测试. 图 3 给出了 Ni 基片(111)方向和其上沉积的 CeO₂ 薄膜(111)方向的 φ 扫描曲线, 薄膜厚度约为 40 nm. 由图 3 可知, CeO₂ 薄膜很好地“继承”了 Ni 基片的平面内织构. 图 3(a) 中 CeO₂(111) φ 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 CeO₂ 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 CeO₂ 薄膜具有很好的平面内织构.

在制备 Ni/CeO₂/Y₂O₃-ZrO₂(YSZ)/YBCO 或 Ni/CeO₂/YSZ/CeO₂/YBCO 等多层结构时, 第一层缓冲

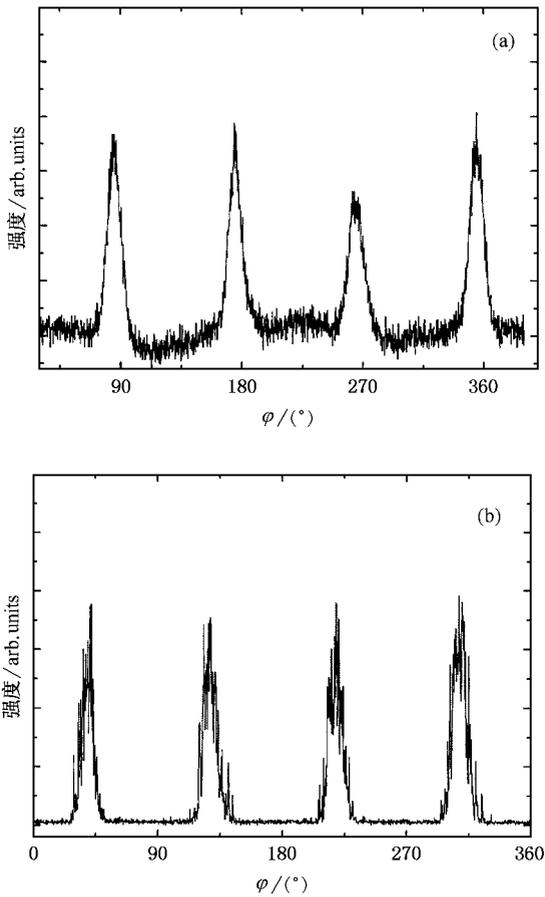


图3 $\text{CeO}_2(111)$ 和 $\text{Ni}(111)$ 的 φ 扫描 (a) $\text{CeO}_2(111)$, FWHM 为 11° (b) $\text{Ni}(111)$, FWHM 为 10°

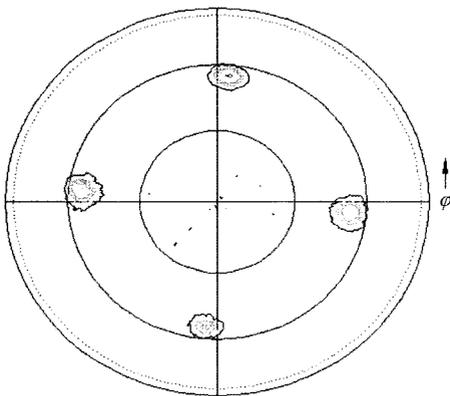


图4 在 Ni 基带上制备的 40 nm 的 CeO_2 薄膜 (111) 方向的极图

层 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 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 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 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 $\text{YBCO}(103)$ φ 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 $1\text{ MA}/\text{cm}^2$.

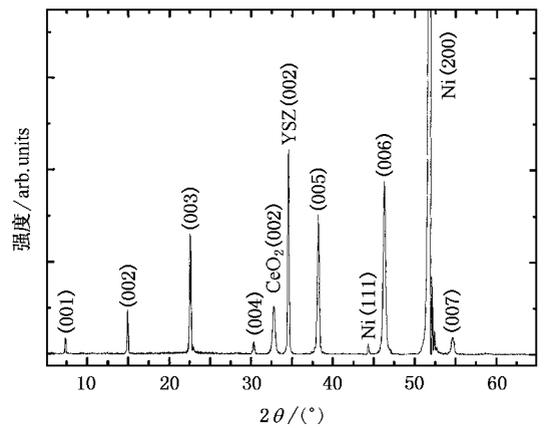


图5 Ni/ CeO_2 / YSZ/CeO_2 / YBCO x 射线衍射 $\theta-2\theta$ 扫描

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 CeO_2 薄膜.分别采用 x 射线衍射 $\theta-2\theta$ 扫描、 ω 扫描、 φ 扫描和极图研究了 Ni 基带上 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°C 时,在 Ni 基带上制备的 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 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 CeO₂ thin films on biaxially textured Ni substrate*

Liu Zhen¹⁾ Wang Shu-Fang^{2)†} Zhao Song-Qing¹⁾ Zhou Yue-Liang¹⁾

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 CeO₂ thin films were fabricated on the biaxially textured Ni substrates by pulsed laser deposition using a gas mixture of 4% H₂ and 96% Ar. X-ray diffraction θ — 2θ scan and ω -scan indicate the CeO₂ thin films are *c*-axis textured , and φ -scan and pole figure of the films reveal the presence of good in-plane texture. The biaxially textured CeO₂ films provide a good template for the fabrication of YBCO conductors.

Keywords : biaxially textured Ni substrate , CeO₂ 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