

# 电子束蒸发制备 YBCO 超导薄膜研究

王连红, 舒勇华, 樊菁

(中国科学院力学研究所, 北京 100190)

**摘要:** 采用电子束沉积制备 YBCO 超导薄膜, 研究了 760°C—840°C 的不同退火温度下高温热处理对 YBCO 薄膜双轴织构、表面形貌及超导性能的影响。超导临界电流密度测试、X 射线衍射 (XRD) 和扫描电镜 (SEM) 的结果表明, 退火温度在 800°C 时, YBCO 薄膜具有良好的织构和平整致密的表面形貌, 在 77K 自场下的临界电流密度  $J_c$  可达  $4.2 \times 10^6 / \text{cm}^2$ 。

**关键词:** YBCO; 电子束沉积; 超导薄膜

## Study of YBCO films prepared by E-beam evaporation

Wang Lianhong Shu Yonghua Fan Jing

(The Key Laboratory of High Temperature Gas Dynamics, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences,  
Beijing 100190, China)

**Abstract** Epitaxial YBCO superconducting films were deposited by E-beam evaporation on single crystalline LaAlO<sub>3</sub> (001) substrate, and microstructure and superconductivity of YBCO thin films were analyzed by X-ray diffraction, scanning electron micrograph and  $J_c$  scan system. We found that YBCO films fired at 800°C have the best biaxial texture and  $J_c$  attached  $4.2 \times 10^6 / \text{cm}^2$  (77K, 0T).

**Keywords** YBCO, E-beam evaporation, Superconducting film

## 1 引言

由于  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  高温超导体 (简称 YBCO) 在 77K 的液氮温区下, 具有高的不可逆场 (7T)、高的载流能力 ( $10^5 \sim 10^7 \text{ A/cm}^2$ )、低的交流损耗等优点, 其应用基础研究成为各国科技工作者的研究热点<sup>[1-5]</sup>。目前 YBCO 超导薄膜的常见制备方法有: 脉冲激光沉积 (PLD, Pulsed Laser Deposition)<sup>[6]</sup>、磁控溅射 (Magnetron Sputtering)<sup>[7]</sup>、热蒸发 (Thermal Evaporation)<sup>[8]</sup>、电子束蒸发 (EBE, E-beam Evaporation)<sup>[9]</sup>、金属有机气相沉积 (MOCVD, Metal Organic Chemical Vapor Deposition)<sup>[10]</sup> 以及金属有机物沉积 (MOD, Metal Organic Deposition)<sup>[11]</sup>。其中电子束蒸发镀膜技术是一种制备高纯物质薄膜的主要方法, 在电子束加热装置中, 被加热的物质被放置于水冷的坩埚中电子束只轰击到其中很少的一部分物质, 而其余的大部分物质在坩埚的冷却作用下一直处于很低的温度, 即后者实际上变成了被蒸发物质的坩

埚。因此, 电子束蒸发沉积方法可以做到避免坩埚材料的污染。本文采用力学所自主研制的多元电子束物理气相沉积系统两步法生长 YBCO 薄膜, 考察退火温度对 YBCO 薄膜的性能和结构的影响。

## 2 实验

采用力学所自主研制的多元电子束物理气相沉积系统两步法生长 YBCO 薄膜。所用衬底为 LaAlO<sub>3</sub> (简称 LAO), 尺寸为 15mm × 15mm, 厚度为 0.5mm。蒸发源选用 Y、BaF<sub>2</sub> 和 Cu, 其纯度均高于 99%。电子束蒸镀时衬底温度保持 500°C, 氧气压力稳定在 10—1Pa。将沉积好的薄膜进行高温退火处理, 然后在 500°C、氧气的气氛下进行 1 小时的处理, 工艺参数如图 1 所示。本文考察了退火温度在 760°C—840°C 时, 退火温度对最终制备的 YBCO 薄膜性能和结构的影响。

采用 Philip X PERT MPDX 射线衍射仪进行

收稿日期: 2010-07-26

作者简介: 王连红 (1979-), 女, 博士后, 研究方向: 超导材料。

了 XRD 扫描, 分析了薄膜的相组成及薄膜的晶体学取向。使用日本 Hitachi 公司 X650 型扫描电子显微镜在 5kV 下进行了观察, 研究了薄膜的表面形貌。临界电流密度则是在莱比锡大学制备的 J-scan Leipzig 系统进行测试的, 测试条件为 77K, 自场。

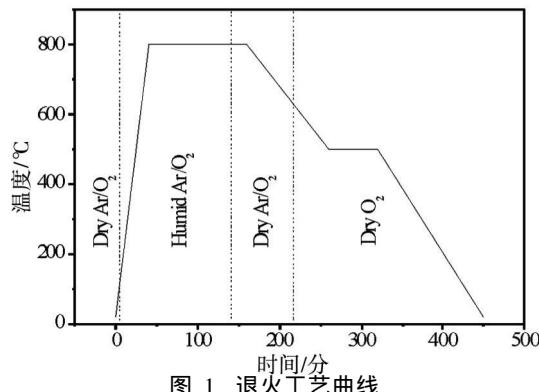


图 1 退火工艺曲线

Fig 1 Process curve

### 3 结果与讨论

#### 3.1 YBCO 薄膜的 XRD 分析

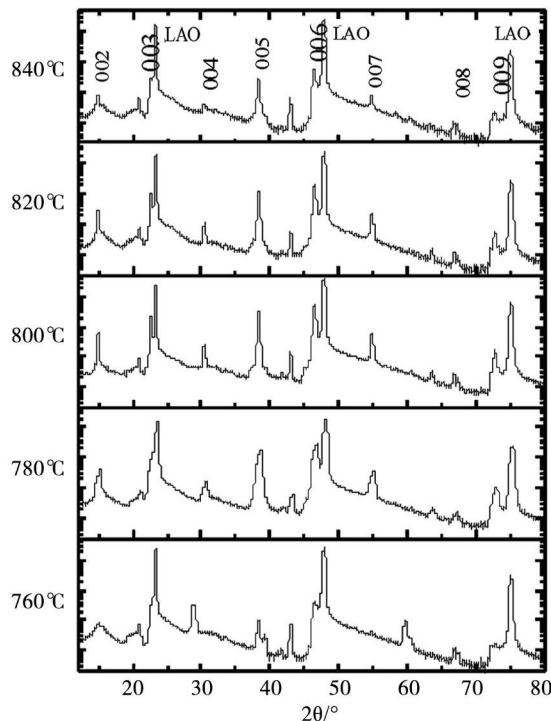


图 2 不同退火温度制备的 YBCO 薄膜的 XRD 图谱

Fig 2 XRD patterns of YBCO films fired at different temperature

图 2 是不同退火温度下制备的 YBCO 超导薄膜的 XRD 衍射花样, 其中 2(a)~2(e) 分别为退火温度 760°C, 780°C, 800°C, 820°C, 840°C 时的 XRD 衍射花样。退火温度高于 760°C, 薄膜的 XRD 衍射图中除了 LAO 的衍射峰外, 其余均为的 YBCO (00l) 衍射峰, 没有其它杂峰, 表明超导薄膜具有 c 轴织构, 且具有很高的相纯度。而退火温度在 760°C 时, YBCO 薄膜 XRD 衍射图中不仅有 LAO 衍射峰、YBCO (00l) 衍射峰, 而在 29° 附近的衍射峰为 BaCuO<sub>2</sub>。这说明退火温度在 760°C 时, YBCO 薄膜中残留未反应完全的第二相。

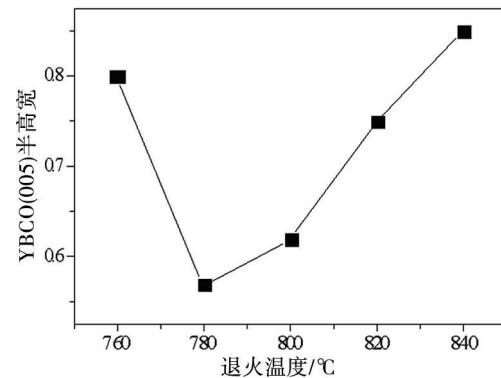


图 3 YBCO 薄膜的 (005) 半高宽 FWHM 与热处理温度关系图

Fig 3 Relationship of YBCO (005) FWHM and fired temperatures

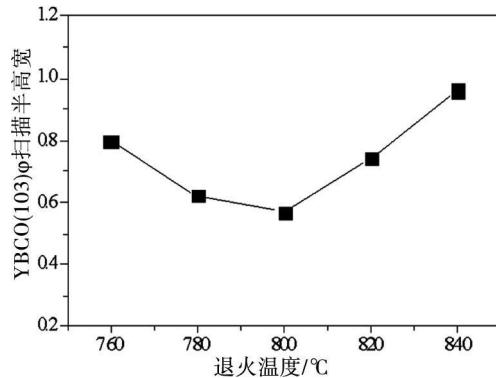


图 4 YBCO 薄膜的 (103) φ 扫描半高宽 FWHM 与热处理温度关系图

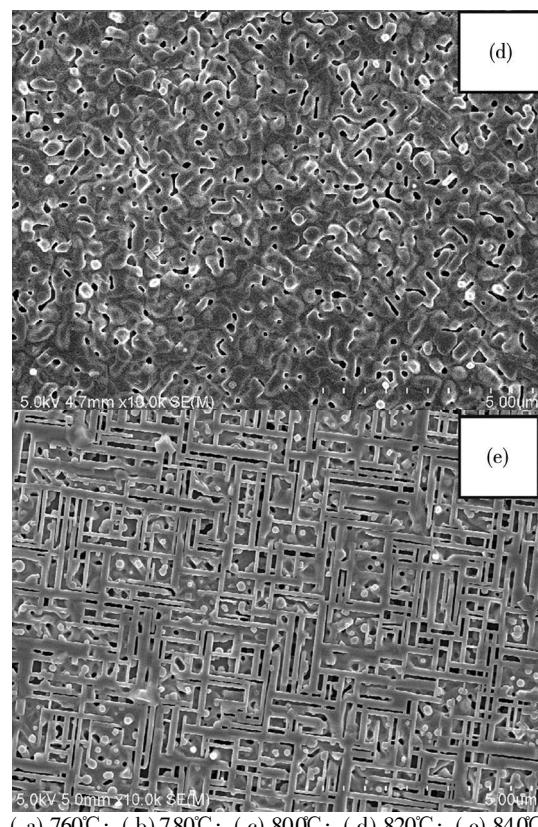
Fig 4 Relationship of YBCO (103) FWHM and fired temperatures

图 3 和图 4 分别为不同退火温度下制备的 YBCO 超导薄膜的 (005) 半高宽和 (103) φ 扫描半高宽。从图 3 中可知, 退火温度为 780°C 的 YBCO 薄膜的摇摆曲线的半高宽 FWHM 最小, 退火温度为 800°C 的 YBCO 薄膜的摇摆曲线的半高宽 FWHM 次之。我们认为在该组实验中, 退火温度

在 780℃和 800℃制备的 YBCO 薄膜的 (001) 取向较好。由图 4 中发现, 退火温度为 800℃的 YBCO 薄膜的 (103)  $\Phi$  扫描半高宽最小, 说明该薄膜的面内取向最好。综合分析薄膜的 (005) 半高宽和 (103)  $\Phi$  扫描半高宽发现, 退火温度为 800℃的 YBCO 薄膜的面内外取向最好。

### 3.2 YBCO 薄膜的 SEM 分析

不同退火温度制备的 YBCO 薄膜其 SEM 结果如图 5 所示, 其中 5(a) ~ 5(e) 分别为烧结温度 760℃, 780℃, 800℃, 820℃, 840℃ 时的 SEM 图。从图中可以看到, 制备的 YBCO 薄膜表面较为平整、没有裂; 退火温度在 800℃时, 制备的薄膜最致密, 并且无针状生长的晶粒, 说明该薄膜为纯 c



(a) 760℃; (b) 780℃; (c) 800℃; (d) 820℃; (e) 840℃

图 5 不同退火温度制备的 YBCO 薄膜的 SEM 图

Fig. 5 SEM images of YBCO films fired at different temperatures

轴生长; 薄膜表面上的大颗粒经过能谱检测确定为后生成的 YBCO。

SEM 图中的针状生长的晶粒可能为 a 轴生长, 而从 XRD 衍射图谱看, 不同退火温度制备的 YBCO 薄膜中均没有除 (001) 晶向外的生长晶粒, 我们认为原因是薄膜表面的 a 轴生长的晶粒占总晶粒的数量太少, 以致 XRD 衍射无法测出。

### 3.3 YBCO 薄膜的超导电性分析

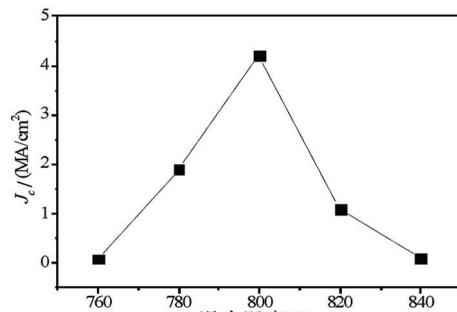


图 6 不同退火温度下 YBCO 的临界电流密度  $J_c$  (0T, 77K)

Fig. 6  $J_c$  of YBCO films fired at different temperatures (0T, 77K)

不同高温热处理过程中的退火温度下 YBCO 超导薄膜临界电流密度  $J_c$  如图 6 所示。通过研究发现, 退火温度在 800°C 时, 其超导性能最好,  $J_c$  可达  $4.2 \times 10^6 / \text{cm}^2$ 。这与前面 XRD 测试结果和 SEM 测试结果相一致, 说明 YBCO 超导薄膜的超导电性与结构的完整性关系密切。

## 4 结论

通过 SEM 分析发现, 本实验采用电子束蒸发制备出了表面较为平整、没有裂纹的 YBCO 超导薄膜。通过 XRD,  $J_c$  - scan 系统测试分析发现: 退火温度在 760—840°C 之间时, 退火温度为 800°C 制备的 YBCO 薄膜中无 a 轴生长晶粒, 基本上为纯 c 轴生长晶粒, 超导电性最好, 其  $J_c$  为  $4.2 \times 10^6 / \text{cm}^2$  (0T, 77K)。

## 参考文献

- [1] Bednorz J G, Muller K A. Discovery of a class of high temperature Superconductors [J]. Science, 1987, 237 (4819): 1133.
- [2] 赵忠贤, 陈立泉, 杨乾生, 等.  $\text{Ba}_2\text{Y}_2\text{Cu}$  氧化物液氮温区的超导电性 [J]. 科学通报, 1987(6): 412.
- [3] Chu C W, Hor P H. Evidence for superconductivity above 40K in the La-Ba-Cu-O compound system

(上接 9页)

## 参考文献

- [1] Radebaugh R. The development and application of cryo coolers since 1985 [C]. In: Chen G B, et al. Proceedings of Cryogenic and Refrigeration Proceedings of IC-CR. Beijing International Academic Publishers and World Publishing Corporation, 2003, 857–870.
- [2] Marquardt D, Radebaugh R. Pulse tube oxygen liquefier [J]. Advances in Cryogenic Engineering, 2000, 45 (A): 457–464.
- [3] Tward E, Chan C K, Colbert R, et al. High efficiency cryocooler [J]. Advances in Cryogenic Engineering, 2002, 47(B): 1077–1084.
- [4] Zia J H. A pulse tube cryocooler with 300W refrigeration at 80K and an operating efficiency of 19% [C]. In: Miller SD, Ross RG. Cryocoolers 14. Annapolis,

- [J]. Phys Rev Lett, 1987, 58: 405.
- [4] Avenhaus B, Poreh A, Laneaster M J, et al. Microwave Properties of YBCO thin films [J]. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 1995, 2(5): 1737.
- [5] Chen M, Donzel L, Lakner M, et al. High temperature superconductors for power applications [J]. Journal of the European Ceramic Society, 2004, 24(6): 1815.
- [6] Bagaria K D, Yamashita H, Ni JC, et al. Control of porosity and composition in large-area YBCO films to achieve micrometer thickness and high  $J_c$  on sapphire substrates [J]. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 2005, 15(2) (PART III): 2962.
- [7] 古宏伟, 杨坚, 刘慧舟, 等.  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  涂层导体的研究进展 [J]. 中国稀土学报, 2006, 24(3): 257.
- [8] Bindi M, Botarelli A, Gauzzi A, et al. High critical current density in YBCO coated conductors prepared by thermal co-evaporation [J]. Superconductor Science and Technology, 2004, 17(3): 512.
- [9] 吴自勤, 王兵. 薄膜生长 [M]. 北京: 科学出版社, 2001, 320.
- [10] Kim C J, Jun B H, Kim H J, et al. Comparative study of YBCO film growth in the cold wall type and hot wall type MOCVD processes [J]. Physica C: Superconductivity and its Applications, 2005, 426–431(II): 915.
- [11] Gupta A, Jagannathan R, Cooper E J, et al. Superconducting oxide-films with high transition-temperature prepared from metal trifluoroacetate precursors [J]. Applied Physics Letters, 1988, 52(24): 2077.

Maryland ICC Inc., 2007, 141–147.

- [5] Vanapalli S, Lewis M, Gan Z, et al. 120Hz pulse tube cryocooler for fast cooldown to 50K [J]. Appl Phys Lett, 2007, 90(7): 072504.
- [6] Gan ZH, Liu G J, Wu Y Z, et al. Study on a 5.0W / 80K single stage Stirling type pulse tube cryocooler [J]. J Zhejiang Univ- Sc A, 2008, 9(9): 1277–1282.
- [7] van de Groep W L, Mullie J C, Willens D W J, et al. Development of a 15W coaxial pulse tube cooler [C]. In: Ross R G. Cryocoolers 15. Boulder CO: ICC Inc, 2009, 157–165.
- [8] Vanapalli S, Lewis M, Gan Z, et al. 120Hz pulse tube cryocooler for fast cooldown to 50K [J]. Appl Phys Letters, 2007, 90: 072504.
- [9] Petach M, Watemoto M, Pruitt G, et al. High frequency coaxial pulse tube microcooler [C]. In: Ross RG. Cryocooler 15. Boulder CO: ICC Inc, 2009, 97–103.