科学通报
第41卷 第21期 CHINESE SCIENCE BULLETIN 1996年11月

用具有单晶硅辐射基片加热器和活性氧发生器的激光淀积系统制备双面 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$超导薄膜

周岳亮 熊旭明 吕惠宾 崔大复 陈正豪
杨国桢 李春苓 何 萌 彭志强 刘彦巍
赵伯儒 许 波 李 林
(中国科学院物理研究所光物理实验室,北京 100080)

关键词 激光法 双面 超导薄膜 Si加热器

超导微波器件是高温超导薄膜的重要应用之一,尤其是使用 $YBa_2Cu_2O_{7-\delta}$(YBCO)高温超导薄膜制作无源微波器件,例如超导微带谐振器、滤波器、超导天线、超导延迟线等[1~3],更受到各国有关研究组的重视,而且发展很快. 这类器件的核心部件是一块刻成特定图形的YBCO超导薄膜,在薄膜的另一面放置另一块低电阻率的金属薄膜或超导薄膜做为接地电极. 这种结构的微波器件虽然取得了很大进展,但是仍然因为基片的微变形或金属电极的电阻而使器件的损耗较大,这种由于非理想接地电极引起的损耗可能占到总损耗的30%. 如果用双面超导薄膜制作微波器件则这种损耗可以消除[4]. 因而,使用双面超导薄膜制备超导微波器件是进一步降低微波损耗的重要途径. 从90年代初到现在国际上一些先进的实验室一直进行制备双面超导薄膜的研究,并在美、日、德等国的一些实验室获得成功. 制备双面超导薄膜的方法有多种,如脉冲激光淀积(PLD)法[5,6]、MOCVD法[7~9]、共蒸发法[10]和溅射法[11]等. 在这些方法中脉冲激光淀积法因为有其独特的优点而倍受重视. 采用激光法制备双面高 T_c 超导薄膜的关键之一是基片的非接触加热技术. 目前常被采用的非接触加热方法有3种:1. 卤素灯加热[5],2. 空腔加热[6],3. 二氧化碳激光加热[12]. 以上3种加热方法都存在着各种不同的缺点,例如结构复杂,使用不便等. 我们曾经制备出高质量单晶Si接触基片加热器,并用以制备出大面积高质量的单面YBCO超导薄膜[13]. 在此基础上进一步研制出了单晶Si辐射基片加热器. 为了提高薄膜质量我们又研制成活性氧发生器. 通过使用具有单晶Si辐射基片加热器和活性氧发生器的激光淀积系统,我们制备出高质量双面YBCO超导薄膜. 经测试零电阻温度 $T_{c0}\geqslant 90K$,临界电流密度 $J_c\geqslant 2\times 10^6 A/cm^2$. 本文介绍用以制备双面YBCO超导薄膜的设备、制备方法以及所制备的薄膜的结构和电学性能测试结果.

1 实验

双面YBCO超导薄膜是在我们研制的PLD-II型激光淀积系统(见图1)上完成的. 其中

1996-04-10收稿,1996-05-30收修改稿

对双面薄膜质量关系最大的是加热器、活性气体发生器和测温控温装置. 下面将它们和薄膜制备方法做一简要介绍.

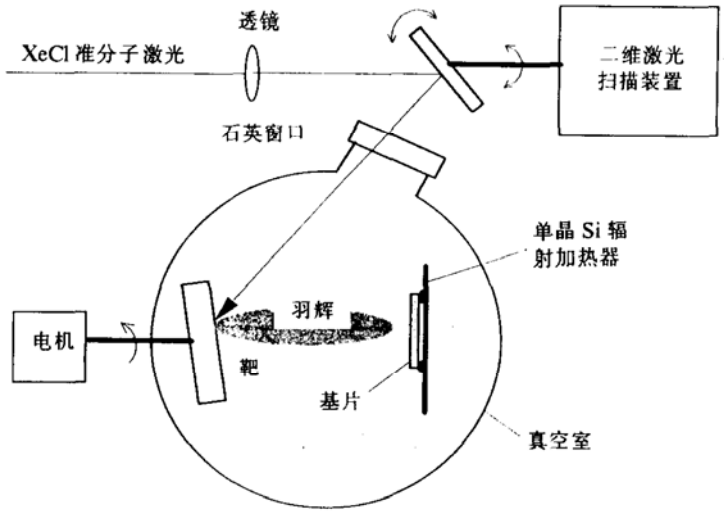


图 1　II 型激光淀积系统

1.1　单晶 Si 辐射基片加热器

单晶 Si 辐射基片加热器的核心部件是一块用单晶 Si 制成的辐射板. 它的熔点高于 1 400℃, 用它制成的平板在温度变化范围从室温到 1 000℃ 的情况下畸变很小, 而且这种材料的化学性质很稳定, 抗氧化能力极强. 此外这种材料是一种半导体材料, 可以直接通电加热, 而不需要像热丝加热器那样另加恒温板. 正因为单晶 Si 有这些优点, 所以它是一种比较理想的制备激光淀积系统所需的基片加热器的材料. 缺点是比较脆, 承受机械应力的能力较低.

我们所研制的单晶 Si 辐射加热器如图 1 所示. 辐射板是一块中央部分有一个浅槽的单晶 Si 片, 制膜时基片放于槽的边缘处, 并通以加热电流, 辐射板槽底平面便因为高温而放出强烈热辐射. 由于基片与辐射面平行且距离很近, 所以它便因为吸收辐射而被加热. 因为辐射体的厚度被严格控制, Si 单晶的电阻率均匀性较高, 所以基片上的温度分布十分均匀. 热屏蔽是用 1～8 层表面抛光的不锈钢片制成, 加有热屏蔽之后, 电能利用效率明显提高, 基片周围的器件温度也较低, 但是也可以不用热屏蔽, 这样加热电流会有所增加. 单晶 Si 基片加热器的电阻一般较小, 在电源电路中需要有大电流变压装置.

1.2　活性氧发生器

制备 YBCO 超导薄膜需要在氧气氛中进行, 气压一般在 10^{-4}～100Pa 之间选择. 因为薄膜的吸氧量直接关系着薄膜的质量, 而提高薄膜氧含量最有效的方法是提高氧气压强或使用活性氧. 对制备 YBCO 高温超导薄膜来说, 可用的活性氧源有(1)原子氧[4], (2)O_3, (3)NO_2[5]. 我们在 II 型激光淀积设备上采用的是直流放电型活性氧发生器, 并用以制备双面超导薄膜取得了很好的效果. 图 2 是我们所研制的活性氧发生器的示意图, 它是由放电管、空心电极、主放电电源和偏压电源等 4 部分构成. 放电管是一根中空的石英管, 内置一对中空电极, 管的侧壁有 1 个或数个小孔, 淀积薄膜时, 将一定流量的氧气从放电管的一端通入, 并缓慢升高主放电电压, 直至起辉放电, 活性气体便从中间小孔喷出. 放电管中央部分的小孔是为了

维持放电管内和放电管外(即真空室)处于不同气压状态,因为真空室内有时需要较低工作气压,以至处于放电较困难的状态,而放电管内如果处于相对较高的气压(直流容易放电状态)放电就容易发生,这样也就降低了活性氧发生器的放电电压. 放电管的位置和小孔的朝向也十分重要,必须仔细调整,以便使整个基片处于均匀的气流场当中.

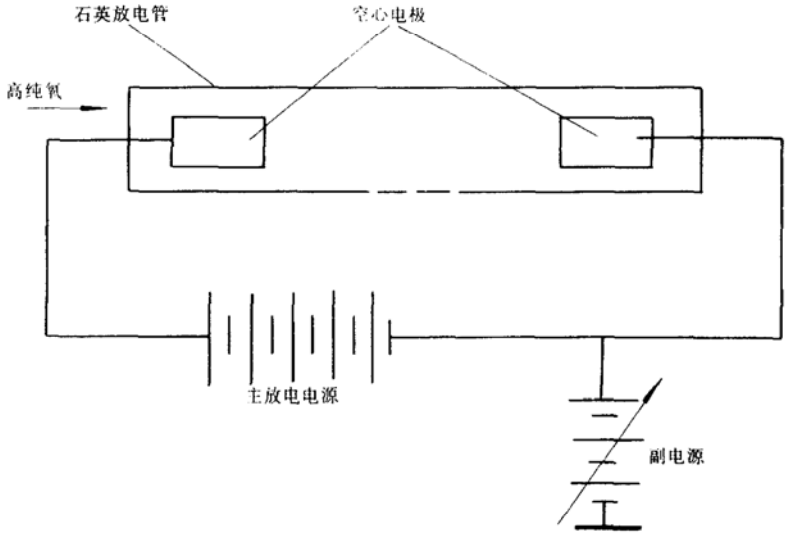


图2 活性氧发生器

1.3 测温控温方法

测量与控制基片的温度对制备优质YBCO超导薄膜来说十分重要. 激光淀积系统采用热电偶与红外测温仪复合测温. 一对热电偶只能测量一点的温度,而红外测温仪则可以通过扫描的方式测量温度场分布,这样就给监控和获得大面积基片上均匀一致的温度分布提供了有利条件,而均匀一致的温度分布对保证大面积薄膜超导电性的一致性是很关键的. 采用可控硅自动控温仪控制基片温度,而供给控温仪的温度取样信号来自加热电流,而不是来自热电偶,它实际上相当于恒流加热. 实验结果表明,对单晶Si加热器采用恒流加热效果相当好,它不仅保证薄膜高质量的超导电性,而且绝不会出现用热偶取样时可能出现的因热偶脱落而烧毁加热器的情况.

1.4 制膜方法

PLD-II型激光淀积系统如图1所示. 制膜时先把真空室抽空到1×10^{-2}Pa或更高的真空度,然后关闭涡轮分子泵,仅用机械泵抽气,并打开充气阀门,让高纯氧流过活性氧发生器的放电管,并从放电管的小孔流入真空室,再调节与充气阀串联的针阀,以便把气压动态调整到所需要的压强(0.1~70 Pa之间). 然后再缓慢升高加热器的温度,当基片温度达到780℃时,再缓慢升高加于放电管两端的主放电电压,直至放电管内起辉放电,开始为制备薄膜提供活性氧. 紧接着打开激光器,开始淀积薄膜,激光在靶上的能量密度是3J/cm^2,重复频率是6Hz,波长是308 nm. 淀积15 min后关掉激光器和活性气体发生器,停止镀膜,并升高真空室内的氧气压强至1大气压,同时把基片温度降至480℃(红外测温仪温度)保持15 min,然后关掉加热器电源,让基片自然冷却到室温. 制备第二面薄膜时,只需将基片翻过来再重复上面的制膜过程.

2　实验结果及讨论

我们已在 $LaAlO_3$ 和 YSZ 基片上制备出 30 mm×30 mm, 10 mm×15 mm 的样品. 用标准四电极法测量表明以上两种样品的主要指标都达到:

第一面　$T_{c0}\geqslant 90K$,　　$J_c\geqslant 2\times 10^6 A/cm^2$,

第二面　$T_{c0}\geqslant 90K$,　　$J_c\geqslant 2\times 10^6 A/cm^2$;

表面微波电阻 R_s 为

第二面　$R_s\leqslant 370\mu\Omega$,　　第一面　$R_s\leqslant 1.7m\Omega$.

图 3 是样品两个面的电阻-温度曲线, 每一个面的电阻温度曲线的转变宽度全都小于 0.6 K. 图 4 是样品的 X 光衍射曲线, 可以看出只有(001)峰, 而且峰宽很窄, (005)峰的半高宽为 0.2 度, 它表明样品的每一面都是很好的 c 取向外延膜. 样品的指标表明第二面微波表面电阻值已进入较好行列, 第一面的微波表面电阻值虽然较大, 但是也远小于任何金属.

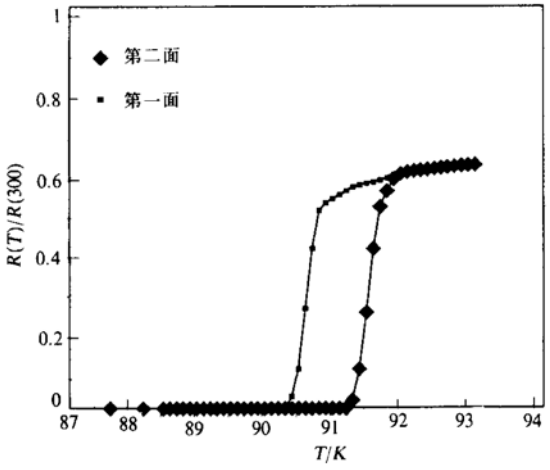


图 3　双面 YBCO 超导薄膜的电阻-温度曲线

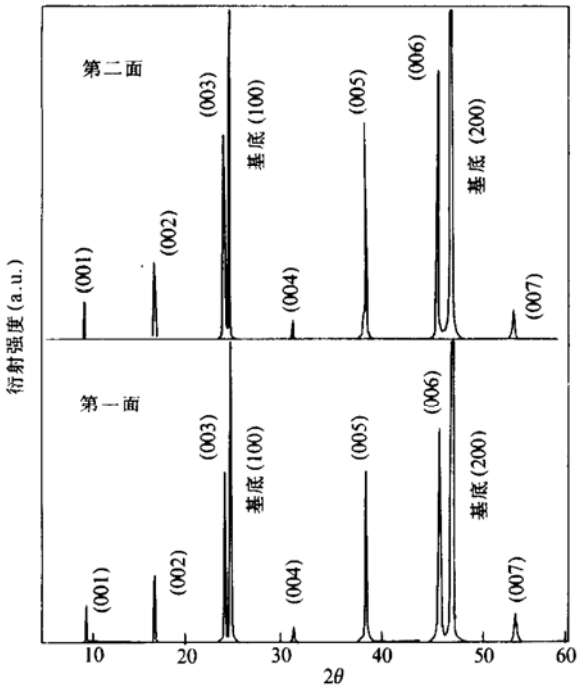


图 4　双面 YBCO 超导薄膜的 X 射线衍射图

3　结论

我们研制成单晶 Si 辐射基片加热器和活性氧发生器, 并用具有这些装置的激光淀积系统制成了优质大面积均匀的 c 取向双面外延 YBCO 超导薄膜, 为研制高质量超导微波器件创造了有利条件.

参　考　文　献

1　Yoshitake T, Tsug H, Lnui T *et al*. Fabrication of low-loss microstrip band-pass filter made from double-sided $YBa_2Cu_3O_x$

films. Jpn J Appl Phys, 1994, 33:L1 156

2 Miura S, Yoshitake T, Tsuge H *et al*. Properties of shielded microstrip line resonators made from double-sided $YBa_2Cu_3O_x$ films. J Appl Phys, 1994, 76:4 440

3 New N, Lyons W J. High-temperature superconducting microwave devices. J Superconductivity, 1993, 6:119

4 Lyone W G, Withers R S. Passive microwave device applications of high T_c superconducting thin films. Microwave J, 1990, 33:85

5 Foltyn S R, Muenchausen R E, Dye R C *et al*. Large area two-sided superconducting $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ films deposited by pulsed laser deposition. Appl Phys Lett, 1991, 59:1 474

6 Holzapfel B, Roas B, Schultz L *et al*. Off-axis laser deposition of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin films. Appl Phys Lett, 1992, 61:3 178

7 Lu Z, Truman J K, Johansson M E *et al*. Large area double-sided $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ films grown by single-source metal-organic chemical vapor deposition. Appl Phys Lett, 1995, 67:712

8 Takemoto J H, Jiackson C M, Manasevit H M *et al*. Microstrip resonators using two-sided metalorganic chemical vapor deposited Er-Ba-Cu-O thin films. Appl Phys Lett, 1991, 58:1 109

9 Desisto W J, Newman H S, Henry R L *et al*. Metalorganic chemical vapor deposition of double-sided $YBa_aCu_3O_{7-\delta}$ thin films. Appl Phys Lett, 1993, 62:1 682

10 Berberich P B, Uty B, Prusseit W *et al*. Homogeneous high quality $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ fimls on 3″ and 4″ substrates. Physica C, 1994, 219:497

11 Vendik O G, Hollmann E K, Zaitsev A G *et al*. Preparation and properties of a capacitor structure formed by double-sided $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin films on $SrTiO_3$ substrate. J Phys, D, 1995, 28:14

12 Li Xiaomin, Kawa Tomoji, Kawai Shichio *et al*. Superconductivity in artificially layered Ba-Ca-Cu-O thin films. Jpn J Appl Phys, 1994, 33:L18

13 Tian Y J, Lu H B, Xu S F *et al*. Large area low microwave surface resistance thin films of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ prepared by pulsed laser ablation. Physica C, 1994, C220:114