

铜铌溅射型低 β 超导腔的研制及初步实验*

郝建奎 赵 夔 张保澄 谢大林 王莉芳 全胜文
沈子林 唐渝兴 张云驰 杨 希 胡岩乐 赵 坤

(北京大学重离子物理教育部重点实验室 北京 100871)

摘要 超导谐振腔是超导加速器的关键部件。用于重离子超导加速器的低 β 加速腔的最佳选择是四分之一波长谐振腔(QWR)。目前,利用无氧铜为基底,溅射一层几微米厚的铌膜,可以获得极好的超导性能和加速离子性能。但是,四分之一波长谐振腔的内表面复杂,溅射均匀的铌膜比较困难。针对此难题,发展了一种多参数可调节的溅射方法,在 $640 \times \phi 220$ 的大型腔体内,成功地生成了一层均匀的、超导性能优异的铌膜。超导腔的低温实验表明铌膜的性能良好。

关键词 薄膜 超导腔 铜铌溅射 QWR 低温实验

1 引言

超导加速腔已经越来越多地应用于加速器中。由于纯铌腔的热导较差,以及造价高昂,科学家早就开始研究新型的超导腔,而镀膜腔就是一种很好的选择。基于这一原则,出现了镀铅腔、铜铌复合腔和铜铌溅射腔。由于无氧铜有非常好的热导,铜铌腔已经越来越广泛应用于加速结构中。溅射产生的铌膜具有膜层致密,膜厚均匀,附着性好等优点,因而铜铌溅射腔是目前研究的前沿热点。欧洲核子中心(CERN)和意大利 INFN-LNL 实验室对铜铌溅射腔的研究处于世界前列。CERN 采用磁控溅射制备的 1.5GHz 铜铌溅射超导腔,加速梯度已超过 $15\text{MV/m}^{[1]}$,达到纯铌腔的水平。LNL 用直流二极溅射方法制成的四分之一波长谐振腔,其加速梯度达到了 $7\text{MV/m}^{[2]}$ 。

铌膜溅射腔的关键技术是如何在无氧铜腔的表面产生一层均匀致密、超导性能良好的铌膜。北京大学重离子所射频超导实验室自 1997 年开始研究重离子超导加速器的超导加速腔。目前这种加速腔型大多采用性能优异的四分之一波长谐振腔(Quarter Wave Resonator),简称 QWR。QWR 内表面形状复杂,按照常规方法溅射形成的铌膜不均匀性严重。通过大量实验研究,我们发展了一种“变参数直流偏压溅射方法”,研制成功铌膜均匀性好、超导性能优异的 QWR,为 QWR 的大规模使用奠定了基础。

2000-05-22 收稿

* 国家自然科学基金资助(19685001)

本文论述了射频超导实验室研制的超高真空溅射系统、QWR 的结构、铌靶的设计考虑、变参数直流偏压溅射方法以及实验研究分析方法。

2 直流偏压溅射装置

四分之一波长谐振腔是一种同轴型谐振腔。对于溅射来说,四分之一波长谐振腔的内表面结构比较复杂,体积大,144MHz 的 QWR 高 640mm,直径 220mm,中心导体棒的外表面与外导体圆筒的内表面均需制备一层几微米厚的铌膜。北京大学射频超导实验室于 1997 年建成了一套直流偏压二极溅射装置。整个系统包括超高真空溅射室、真空泵组、进气控制系统和电源以及残余气体分析设备。为使束孔附近的电场分布均匀,采用了辅助阴极以及附加的外壁支撑腔体。谐振腔和靶之间的细节如图 1 所示。溅射中用的阴极靶是一高纯铌做的圆筒。

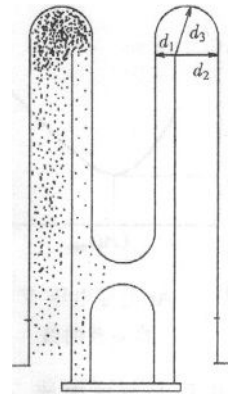


图 1 QWR 溅射分布简图

3 复杂形状谐振腔的超导铌膜制备

首先采用 SUPERFISH 程序对四分之一波长谐振腔进行腔型优化,接着用 MAFIA 程序进行了三维设计。由于四分之一波长谐振腔形状比较复杂,在靶上加电压后,腔内电场分布均匀与否直接关系到成膜的质量。我们用 POISSON 程序对阴极靶进行了优化设计^[3]。在此基础上,开始对模型腔进行溅射实验。

3.1 帕邢定律

直流二极溅射结构简单,比较容易控制。铜铌四分之一波长谐振腔的溅射是在真空中,利用低压气体(这里是氩气)放电,产生等离子体,利用氩离子轰击铌靶,使铌靶溅射出铌原子,沉积在铜腔表面,从而形成铌膜。要产生持续的等离子体,确定工作气体的击穿电压很重要。这里起决定性作用的一条规律是帕邢(Paschen)定律。由汤生放电理论,产生自持放电的条件为

$$\frac{1}{\gamma} = e^{\alpha d} \quad (1)$$

其中 d 为极间距离,汤生第三电离系数 γ 表示一个正离子从阳极到阴极经过单位路程与中性气体粒子作非弹性碰撞所产生的电子-离子对数目,汤生第一电离系数 α 表示一个电子从阴极到阳极经过单位路程与中性气体粒子作非弹性碰撞所产生的电子-离子对数目, $\alpha = APe^{BPd/V}$, A, B 为与温度和气体有关的常数。由(1)可得到击穿电压的表达式为^[4]

$$V_s = \frac{BPd}{\ln\left(\frac{APd}{\ln\frac{1}{\gamma}}\right)}$$

击穿电压 V_s 只是气压与极间距的乘积 Pd 的函数, 这就是帕邢定律. V_s 有一极小值:

$$V_{s,\min} = 2.72 \frac{B}{A} \ln \frac{1}{\gamma}, \text{ 当 } (Pd)_{\min} = \frac{2.72}{A} \ln \frac{1}{\gamma}.$$

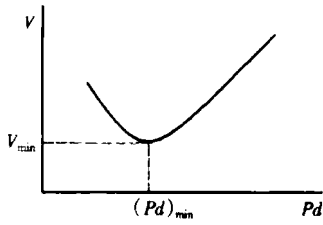


图 2 Ar 击穿电压 V 与 Pd 的关系曲线

平面电极的 V_s 与 Pd 的关系如图 2 所示. 对于氩气, $(Pd)_{\min} = 120.0 \times 10^{-2} \text{ m} \cdot \text{Pa}$, $V_{s,\min} = 137 \text{ V}$.

在直流二极溅射装置中, 由于溅射气压高, 从靶表面溅射出的产物在飞向基底的过程中, 受到气体分子的碰撞并扩散, 在此情况下, 到达基底的溅射物质总量可近似为^[5]

$$Q \approx k_1 k_2 U_s I_s t / Pd,$$

其中 k_1 为常数, k_2 为由靶物质决定的常数, U_s, I_s 分别为放电电压与放电电流, t 为溅射时间, P 为溅射气压, d 为靶与基底之间的距离. 可以看出, 靶原子在基底上的沉积量与溅射装置消耗的电能 $U_s I_s t$ 成正比, 与气压与靶到基底距离的乘积 Pd 成反比.

3.2 内外导体表面的膜厚均匀性问题及解决办法

意大利 LNL 实验室选择的靶的半径 R_c 为腔内导体半径 R_i 和外导体半径 R_o 的平均值^[6], 即

$$R_c = \frac{R_i + R_o}{2}.$$

但是, 从常识上可以看出, 由于外导体的内表面面积大于内导体的表面积, 如果内外导体的溅射速率相同, 沉积在内导体上的铌膜肯定要比外导体上的厚. 我们的实验结果也的确如此. 试着把阴极靶的半径加大, 使得靶与外壁的距离减小, 溅射后发现内外导体上膜厚的不均匀性反而更大了. 我们对整个溅射过程, 尤其是对靶径进行了仔细的分析. 从溅射时的参数发现, 溅射气压为 10 Pa , 靶与内外导体壁的距离为 3 cm , 可知溅射时工作在帕邢曲线最低点的左半部分, 击穿电压 V_s 随 Pd 值的增大而减小. 由此可知, 要使内外导体上的铌膜均匀, 也就是说要使沉积在外壁上的铌的总量大于沉积在内导体上的铌的总量, 应当使靶的半径减小 (参看图 1), 使得 $Pd_1 < Pd_2$, 这时靶与内导体之间产生等离子体需要的电压要比与外导体之间产生等离子体所需的电压要高, 靶与外导体之间的等离子体放电作用要强一些, 这样便可使内外导体上产生比较均匀、膜厚相近的铌膜.

基于这一原则, 我们对靶径进行了调整, 通过多次实验, 不断改变靶的尺寸和溅射时各个参量的值, 最后得到了比较合适的参数, 溅射镀膜后, 内外导体壁上的铌膜厚度基本达到均匀一致.

3.3 导体壁上下膜厚的均匀性问题及解决

在解决腔体内外导体膜厚不均的同时, 腔体上下的膜厚也出现了不均匀性问题, 尤其是顶部圆角部分的铌膜, 不容易溅射均匀. 靶的顶部与腔各部分的距离不等, $d_3 > d_2 >$

d_1 (见图1),即各个部分不能同时产生等离子体.起初,我们一下子把气压加到14Pa左右,发现在圆角以下的腔体部分产生等离子体放电,而顶部却不起弧.分析后知,靶顶到腔顶部的距离 d_3 大于 d_1 和 d_2 ,即 $Pd_3 > Pd_2 > Pd_1$,由帕邢定律知,顶部产生等离子体所需电压要高于底部.如果一下就把气压加到足以使下部产生等离子体放电,就抑制了顶部产生等离子体.而如果先把进气量调得较小,腔内气压较低,只能使顶部产生等离子体,然后再慢慢把气压调节到正常工作气压,则上部的等离子体也不消失,只是强弱不同.这样能使各部分溅射的钨膜均匀.

实验中我们正是按照上面的方法,调节溅射时的气压,从8Pa逐渐变到16Pa,并调节溅射电压、电流,使腔内不同区域的溅射条件不一样,使顶部圆角、外导体、内导体先后溅射成膜,并通过调节溅射时间,使各部分的膜厚趋于一致.实验结果证明这一方法很好地解决了上下钨膜厚度不均的问题.

3.4 偏压溅射

溅射过程中,氩气原子以及杂质气体可能会沉积到基片上,对钨膜的性能造成不良影响.采用偏压溅射能够改善这一点.偏压溅射原理如图3所示,在基片上加适当的偏压,这样大部分离子在轰击阴极靶的同时,也有一部分离子轰击正在成膜的基片,使得基片中吸附的气体释放出来,从而使膜层更加致密,改善钨膜的性能.实验中在腔体上加-100V的偏压,从测得的钨样片性能中(见下一部分图4)可以看到,偏压对钨膜性能有很大改善.

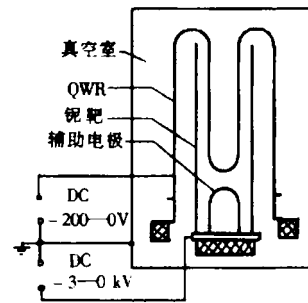


图3 直流偏压二极管溅射示意图

4 钨膜显微结构及超导性能测量

我们对钨样片进行了显微结构和超导性能的测量.图4是用扫描电子显微镜观测到的钨膜的微观结构.由图可见加偏压以后,钨膜的微观结构明显改善.图5是测得的临界温度曲线和残留电阻比(RRR)曲线.

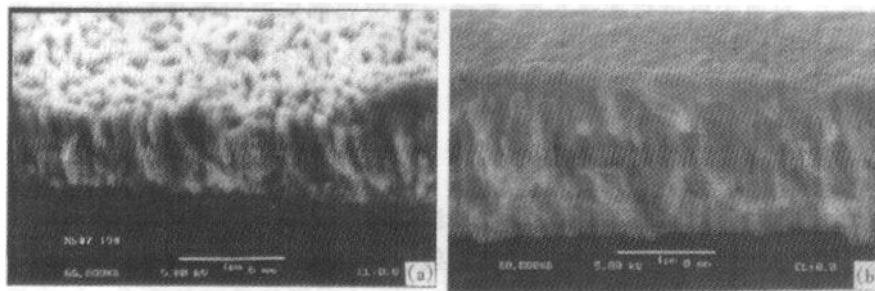


图4 钨膜的微观结构
(a) 无偏压;(b) 有偏压.

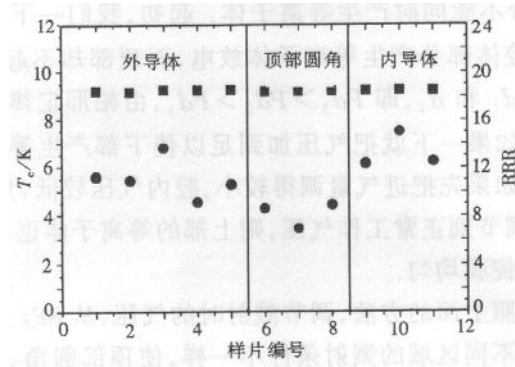


图 5 铌膜样片的临界温度 T_c 和残留电阻比(RRR)曲线

■ B: T_c , ● C: RRR.

5 无氧铜 QWR 的铌膜溅射及初步低温实验

通过模型腔的多次实验,射频超导实验室已经成功地发展了适用于复杂结构谐振腔

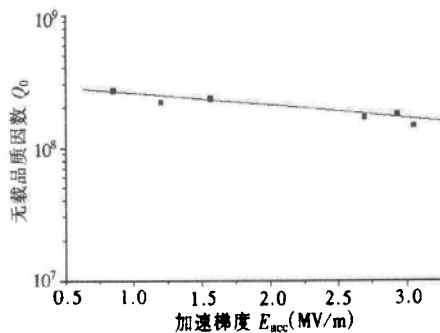


图 6 QWR 的超导性能实验结果

的直流偏压溅射方法,开始对无氧铜 QWR 进行溅射镀膜.在对光洁度极高的无氧铜 QWR 腔内表面进行电抛光和真空氩离子清洗后,对 QWR 进行了溅射,于 1999 年 10 月成功地研制出我国第一只高质量的铜铌溅射超导 QWR. 1999 年底和 2000 年初对铜铌溅射 QWR 进行了低温静态实验,测得腔的 Q 值为 5×10^8 . 图 6 是 Q 值随加速梯度变化的曲线.虽然这一结果比当前国外的水平低一些,但研究周期比国外要短得多.经分析得知, Q 值较低的原因主

要是铌膜中的 Ar 含量较高.下一步要对腔体进行高温除气处理,以使腔的性能达到当前世界的先进水平.

在完成超导谐振腔的低温静态实验后,要把超导腔安装到重离子所 2×6 MV 串列加速器的终端上,对质子束进行加速实验,来进一步检验铜铌溅射超导腔的性能,进行超导重离子加速单元的研究.

6 小结

北京大学射频超导实验室采用变参数直流偏压二极溅射方法,成功地解决了复杂几何形状超导腔——四分之一波长谐振腔的溅射镀膜过程中的铌膜均匀性问题,制备出铌膜性能良好的铜铌溅射超导腔,残留电阻比(RRR)达到了超导腔的要求.初步低温实验测得腔的 Q 值为 5×10^8 . 腔的改进正在进行中.

参考文献(References)

- 1 Benvenuti C, Calatroni S et al. Particle Accelerators, 1998, 61:371—382
- 2 Stark S, Palmieri V et al. Niobium Sputter-coated QWRs. In the Proceedings of the 8th Workshop on RF Superconductivity, Abano Terme (Padova), Italy, 1997. October 6—10, 1156
- 3 HAO Jian-Kui et al. Nuclear Technology, 2000, 23(1):36—38 (in Chinese)
(郝建奎等. 核技术, 2000, 23(1):36—38)
- 4 XU Xue-Ji, ZHU Ding-Chang. Gases Discharge Physics. Shanghai: Fudan University Publishing House, 1996. 106
(徐学基, 诸定昌. 气体放电物理. 上海: 复旦大学出版社, 1996. 106)
- 5 WANG Hong-Hong, TIAN Min-Bo. Enhancement of Surfaces by Ion Beams. Mechanical Industry Publishing House, 1992. 51
(汪泓宏, 田民波. 离子束表面强化. 机械工业出版社, 1992. 51)
- 6 Palmieri V et al. Sputtering of Niobium Thin Films onto Copper Quarter Wave Resonators. In the Proceedings of the 5th Workshop on RF Superconductivity. DESY Hamburg, Germany, 1991. August 19—23, 473

**Researches and Preliminary Experiments on Copper-Niobium
Sputtered Low- β Superconducting Resonator**

HAO Jian-Kui ZHAO Kui ZHANG Bao-Cheng XIE Da-Lin WANG Li-Fang
QUAN Sheng-Wen SHEN Zi-Lin TANG Yu-Xing ZHANG Yun-Chi YANG Xi
HU Yan-Le ZHAO Kun

(MOE Key Laboratory of Heavy Ion Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract Superconducting resonator is the important component of a superconducting accelerator. The best choice of the acceleration cavity for heavy ion superconducting accelerator is quarter wave resonator (QWR). By sputtering a layer of niobium films of several microns on the OFHC copper substrate, good superconducting properties and acceleration properties of the cavity can be obtained. However, it is very difficult to get uniform niobium films by sputtering because the inner surface of the QWR is complicated. To deal with this problem, we developed a multiparameter adjusting method to control the sputtering process of different parts of the QWR. A layer of uniform niobium film with nice superconducting performance is obtained. The low temperature experiments with liquid helium show that the Cu-Nb QWR has good superconducting characters. The Q-value of the cavity is about 5×10^8 .

Key words film, superconducting cavity, sputter, QWR, low temperature experiment

Received 22 May 2000

* Supported by NSFC. (19685001)