科学通报
第41卷 第2期 CHINESE SCIENCE BULLETIN 1996年1月

铁电体/高温超导体集成薄膜的制备与性质*

曹立新 徐 阳 赵柏儒 许 波 吴 非 李 林 赵忠贤
(中国科学院物理研究所国家超导实验室,北京 100080)

关键词 高温超导体 铁电体 集成薄膜

高温超导体的载流子浓度比常规超导体的低(对 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 而言,$n \geqslant 5\times10^{21}/cm^3$),其载流子间的 Coulomb 屏蔽长度大,因而高温超导体中的载流子浓度易受外加电场的影响,或者说,能够由外场来调制. 1991 年,文献[1 ~ 3]研究了以 $SrTiO_3$ 为门电极的金属 - 绝缘体 - 半导体 (metal-insulator-semiconductor, MIS) 型的三端器件 (three terminal devices),即超导场效应晶体管 (superconducting field-effect transistor, SuFET). 但实际的增益只达到 0.9[4]. 通过采用高介电系数的门电极可以对这种超导场效应晶体管加以改进. 理想的选择是铁电体薄膜,这归因于以下几点: (1)常用的铁电体 $BaTiO_3$、$Pb(Zr_{1-x}Ti_x)O_3$ 为钙钛矿结构,与高温超导体结构相同,两种薄膜间有较好的晶格匹配及取向外延关系. (2)铁电体有很高的介电系数,有利于提高器件的增益. (3)铁电体的极化在外场撤去之后能保留下来,从而使三端器件具有记忆效应. 另外,将铁电体和高温超导体薄膜集成生长,还可以利用超导体在超导态和正常态的不同的载流行为对铁电体的极化状况起控制作用,从而提高铁电体器件(如光开关器件、信息存储器件等)的灵敏度和开关速度. 基于铁电体对高温超导体的场效应的物理研究也具有丰富的内容,因为铁电体为门电极的场效应对高温超导体超导转变温度、载流能力、磁通钉扎都将产生影响. 但总的来说,铁电体/高温超导体集成薄膜的研制和研究在国际上还处于初步阶段. 近几年,国外学者以改善铁电体薄膜存储器的疲劳性能为目标,利用高温超导体在室温下优良的金属性及其与铁电体薄膜良好的匹配关系,把高温超导薄膜作为铁电存储器的电极,对高温超导体/铁电体异质结构进行了研究[5]. 但对铁电体/高温超导体集成薄膜在电场作用下的超导态性质研究的还很少,国内还没有这方面的报道. 我们先是研究铁电性和高温超导电性的相互作用,进而研究场效应三端器件. 作为第一步,本文对铁电体/高温超导体集成薄膜的生长进行了研究,测定了集成薄膜的超导态性质及介电性质.

1 实验

把纯度均为 99.0% 的 PbO, ZrO_2 和 TiO_2 粉料充分研磨混合后,压靶,在 800 ~ 900 ℃ 保温 12 h, 960 ℃ 保温 1 ~ 2 h 制得 PZT 烧结靶, YBCO 靶的制备是用 99.99%Y_2O_3、99.0%$BaCO_3$ 和 99.5%CuO 粉末充分研磨混合后,在 980 ℃ 烧结 24 h, 其间研磨两次,最后于 990 ℃ 烧结 24 h, 靶子尺寸均为 ∅65 mm × 4 mm. 实验中采用名义成分为 $Pb_{1.1}(Zr_{0.53}Ti_{0.47})O_3$

1995-01-26 收稿, 1995-06-12 收修改稿
* 国家超导中心资助项目

表1　PZT/YBCO集成薄膜制备工艺

	PZT	YBCO
沉积温度/℃	630	680
氧氩比	1:3	1:3
沉积气压/Pa	5	60
靶基距离/mm	35	35
溅射功率/W	70	–
溅射电压/V	–	100
自偏压/V	210	–
溅射电流/mA	–	500
沉积时间/min	60	60
退火气氛	10^5 Pa (O_2)	10^5 Pa (O_2)
退火温度/℃	630	480
退火时间/min	30	30

(PZT)的烧结靶及$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$(YBCO)陶瓷靶，在直流、射频双靶磁控溅射仪上原位沉积PZT/YBCO及YBCO/PZT薄膜．具体沉积参数列于表1. 使用X射线衍射仪(MacScience MXP18A-HF)分析了薄膜的结构，扫描电子显微镜(Hitachi S-4200)观察了薄膜的表面形貌．分别采用四探针法测定了薄膜的超导转变(制备欧姆接触电极时，把表面PZT层用刀片刻划，使溅射Ag电极与YBCO底层相接触)，低频阻抗分析仪(HP4192A)测量了介电常数．

2　结果与讨论

图1为PZT, YBCO薄膜及PZT/YBCO, YBCO/PZT集成薄膜的X射线衍射图，基片分别为$LaAlO_3$(LAO)和$SrTiO_3$(STO). 能够在LAO, STO基片上外延得到单相的、与基片有良好取向关系的PZT薄膜(图1中1, 2)．由图1中3可以看出，在*c*取向的YBCO薄膜上溅射沉积的PZT薄膜同样是单一取向的单相薄膜．但是，从我们的初步结果发现，在PZT/STO衬底上不易得到*c*取向的单相YBCO薄膜．这也许是YBCO薄膜的取向生长对其与衬底的晶格失配比较敏感的缘故．另一方面，YBCO沉积过程中，可能的YBCO和PZT间的互扩散也许是一个不可忽视的原因，更深入的工作正在进行之中．

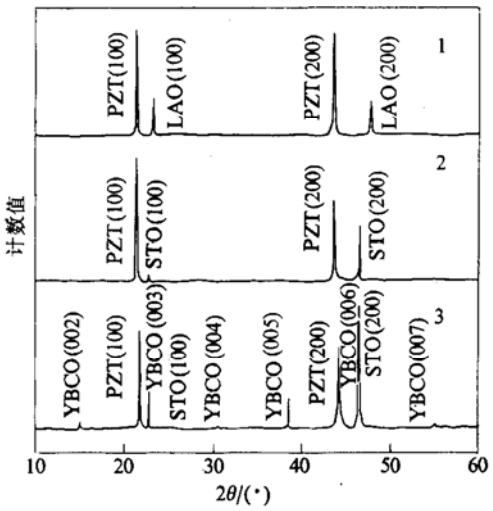

图1　PZT薄膜和PZT/YBCO集成薄膜X射线衍射图
1为PZT/LAO, 2为PZT/STO, 3为PZT/YBCO/STO

该集成薄膜的扫描电镜PZT表面形貌和横截面形貌照片示于图2. PZT薄膜表现为连片式的生长，薄膜生长致密，薄膜最表面一层由棱边互相平行的近似方形的镶嵌颗粒(mosaic)组成，而且其棱边与基片棱边约成45°，说明这种镶嵌颗粒的生长与基片*a-b*平面有关．对于所分析的样品，YBCO和PZT薄膜厚度分别为130 nm及225 nm左右．

由PZT/YBCO集成铁电/超导薄膜的*R-T*超导转变测量(图3)看出，YBCO薄膜仍然具有良好的超导电性，T_{c_0}=83.4 K.

为测量PZT薄膜的介电性能，在PZT/YBCO集成薄膜上沉积了∅=1 mm大小的银电极．在1 kHz下测量得到PZT薄膜相对介电常数($K=\varepsilon/\varepsilon_0$)为350. 关于PZT薄膜电滞回线的测量正在准备进行中．

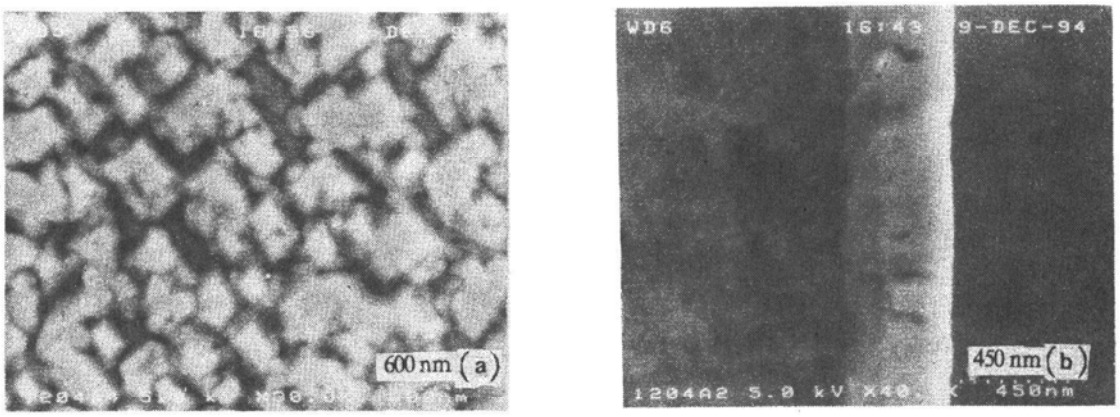

图 2 PZT/YBCO/STO 样品扫描电镜照片
(a)PZT 薄膜表面形貌像, (b)PZT/YBCO 集成薄膜横截面形貌像

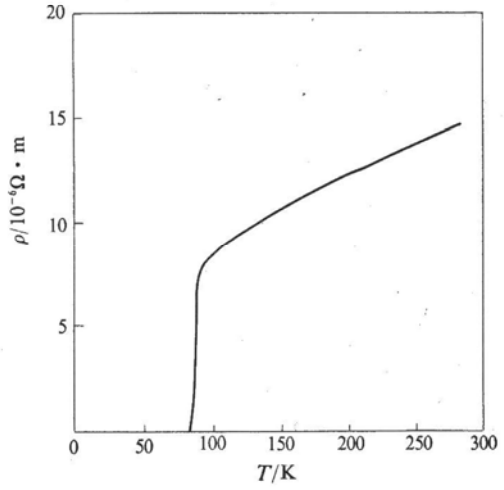

图 3 PZT/YBCO/STO 样品 *R-T* 超导转变曲线

3 结论

在 *c* 取向的 YBCO 外延薄膜上溅射沉积了单一取向的单相 PZT 薄膜, 该集成薄膜 $T_{c_0}=83$ K, $\varepsilon/\varepsilon_0=350$; 对 PZT 薄膜的电滞回线的测量正在准备进行之中.

致谢 中国科学院物理研究所朱镛研究员、张道范老师与我们进行有益的讨论, 清华大学无机非金属材料教研室苟焕林老师、阎培渝老师在薄膜的低频阻抗分析上的帮助, 在此一并致谢.

参 考 文 献

1 Levy A, Falck J P, Kastner M A *et al*. Field-effect conductance of $YBa_2Cu_3O_6$. J Appl Phys, 1991, 69(8): 4439～4441

2 Mannhart J, Schlom D G, Bednorz J G *et al*. Influence of electric fields on pinning in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ film. Phys Rev Lett, 1991, 67(15): 2099～2101

3 Xi X X, Li Q, Doughty C *et al*. Electric field effect in high T_c superconducting ultrathin $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ film. Appl Phys Lett, 1991, 59(26): 3470～3472

4 Wu N J, Lin H, Xie K *et al*. PZT/YBCO integration and characterization of a three terminal device. Ferroelectrics, 1994, 156: 73～78

5 Ramesh R, Remschnig A, Hart D L *et al*. Epitaxial cuprate superconductor/ferroelectric heterostructures. Science, 1991, 225: 944～946