

06;13

Планарные емкостные структуры на основе сегнетоэлектрических пленок титаната-станната бария на сапфире для сверхвысокочастотных применений

© А.В. Тумаркин, М.В. Злыгостов, А.Г. Гагарин, А.Г. Алтынников, Е.Н. Сапего

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет „ЛЭТИ“,
Санкт-Петербург, Россия
E-mail: avtumarkin@yandex.ru

Поступило в Редакцию 7 марта 2019 г.

В окончательной редакции 1 апреля 2019 г.

Принято к публикации 1 апреля 2019 г.

Исследованы структурные свойства сегнетоэлектрических пленок титаната-станната бария на подложках сапфира и сверхвысокочастотные характеристики планарных емкостных элементов на их основе. Установлено, что состав газовой среды в процессе осаждения пленки оказывает существенное влияние на кристаллическую структуру, фазовый состав пленок и их электрические характеристики. Впервые продемонстрирован низкий уровень диэлектрических потерь планарных емкостных элементов на основе пленок титаната-станната бария в частотном диапазоне 2–60 GHz при высокой управляемости.

Ключевые слова: сегнетоэлектрические пленки, титанат-станнат бария, сверхвысокочастотные применения.

DOI: 10.21883/PJTF.2019.13.47947.17776

Интерес к сегнетоэлектрикам обусловлен зависимостью диэлектрической проницаемости данных материалов от внешнего электрического поля, относительно низким уровнем диэлектрических потерь и устойчивостью к сигналу высокого уровня мощности [1,2]. Указанные свойства делают сегнетоэлектрические (СЭ) материалы перспективными для применения в таких сверхвысокочастотных (СВЧ) устройствах, как вариконды, фазовращатели, перестраиваемые фильтры [3,4]. Наиболее исследованными СЭ-материалами для СВЧ-применений являются пленочные твердые растворы титаната бария-стронция $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ (BST) [1,5,6].

Как альтернативу BST можно рассматривать титанат-станнат бария $BaSn_xTi_{1-x}O_3$ (BSnT) [7,8]. Преимуществами данного материала являются меньшие величины диэлектрической релаксации и возможность приложения больших полей управления [9], что важно для реализации мощных сегнетоэлектрических СВЧ-устройств.

На данный момент опубликован ряд работ, в которых исследуются структурные и электрические свойства пленок BSnT с целью их применения в электрически управляемых устройствах [7–14]. Отметим, что в подавляющем большинстве работ рассматриваются твердые растворы с содержанием олова, не превышающим 30%, что обеспечивает высокие значения диэлектрической проницаемости и, как следствие, сравнительно высокие потери. Характеристики слоев BSnT зависят от температуры осаждения [7–10], подложки [11,12], давления и состава рабочего газа [13,14]. В данных работах электрические характеристики слоев исследуются в составе плоскопараллельных емкостных структур металл–диэлектрик–металл (МДМ). Конструкция МДМ-конденсатора позволяет использовать малые

управляющие напряжения для изменения емкости, но именно вследствие этого применение МДМ-структур возможно только в малосигнальных устройствах. Однако одно из главных потенциальных преимуществ СЭ-устройств перед полупроводниковыми аналогами, а именно возможность работы при высоких уровнях мощности, может быть реализовано только в планарном исполнении на диэлектрической подложке [2].

В немногочисленных работах, посвященных осаждению пленок BSnT на диэлектрик, исследуются свойства полученных слоев на структурно согласованных подложках, таких как $LaAlO_3$ и MgO [15,16], не обладающих оптимальными СВЧ-свойствами. Данные подложки обеспечивают возможность ориентированного роста пленки, однако по интегральным СВЧ-характеристикам планарные структуры BSnT на этих подложках уступают, например, BST-аналогам на сапфире [17]. Кроме того, следует отметить, что в подавляющем большинстве работ приводятся экспериментальные данные по диэлектрическим потерям в емкостных структурах BSnT в частотном диапазоне 1 kHz–1 MHz. Эти данные не позволяют сделать вывод о применимости полученных пленок на сверхвысоких частотах.

В связи с этим целью настоящей работы является исследование структуры и высокочастотных диэлектрических свойств тонких слоев BSnT, выращенных на подложках сапфира, с целью их дальнейшего применения в составе мощных нелинейных элементов СВЧ-диапазона.

Осаждение покрытий проводилось методом высокочастотного магнетронного распыления керамической мишени состава $BaSn_{0.5}Ti_{0.5}O_3$ на подложки чистого сапфира (Al_2O_3 (*r*-срез)). Выбор состава с высоким содержанием олова связан с необходимостью получения

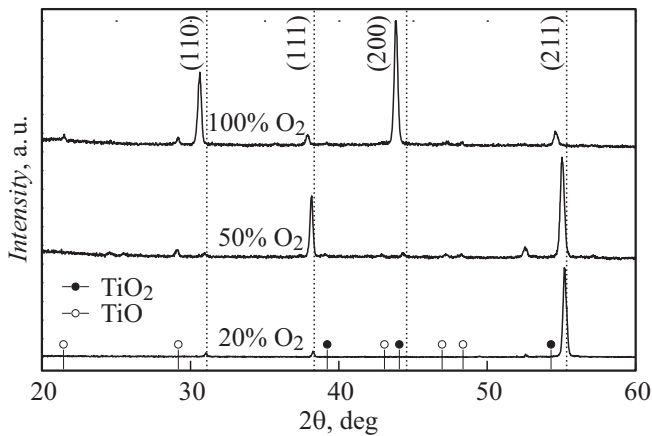


Рис. 1. Дифрактограммы тонких пленок BSnT на подложках Al_2O_3 , полученных при различных концентрациях кислорода в газовой среде.

пленок с низкими значениями диэлектрических потерь на сверхвысоких частотах. Температура подложки составляла 750°C [7]. В качестве рабочего газа в процессе осаждения использовалась смесь аргона и кислорода в соотношениях 50/50, 80/20, а также чистый кислород; давление рабочего газа в процессе осаждения пленок составляло 2 Па. После осаждения пленки охлаждались в атмосфере рабочего газа со скоростью $2\text{--}3^\circ\text{C}/\text{min}$. Толщина пленок составляла 500 nm.

Кристаллическая структура и фазовый состав полученных пленок исследовались методом рентгеновской дифракции с помощью дифрактометра ДРОН-6 на эмиссионной спектральной линии $\text{CuK}\alpha_1$ ($\lambda = 1.5406 \text{ \AA}$). Для электрофизических исследований на основе пленок BSnT на сапфире были сформированы планарные конденсаторы, ширина зазора в которых составляла $5 \mu\text{m}$. Верхние электроды конденсаторов были изготовлены посредством термического осаждения пленки Cu толщиной $1 \mu\text{m}$ с адгезионным подслоем хрома с последующей литографией и химическим травлением. Измерения емкости C и добротности $Q = 1/\tan \delta$ конденсаторов были проведены на частоте 2 GHz с помощью полуволнового полоскового резонатора и векторного анализатора HP 8719C. Резонатор обеспечивает ненагруженную добротность 1000, погрешность измерения емкости и добротности 1 и 5% соответственно, возможность подачи управляющего напряжения U до 1000 V, что соответствует напряженности управляющего поля $200 \text{ V}/\mu\text{m}$. Управляемость конденсаторов рассчитывалась как отношение емкостей при нулевом и максимальном приложенном напряжении управления: $n = C(0 \text{ V})/C(U_{\text{max}})$. Характеризация образцов на частоте 60 GHz проводилась по методике открытого резонатора (Фабри–Перо).

На рис. 1 представлены дифрактограммы пленок BSnT, полученных при различных концентрациях кислорода в составе рабочего газа. Пунктирные линии соответствуют угловым положениям рефлексов для со-

става распыляемой мишени $\text{BaSn}_{0.5}\text{Ti}_{0.5}\text{O}_3$. Отметим, что позиции рефлексов существенно смещаются в сторону больших углов при уменьшении содержания кислорода в газовой среде, что для поликристаллических образцов означает изменение состава твердого раствора. Исходя из угловых положений рефлексов в атмосфере чистого O_2 формируется поликристаллическая пленка состава $\text{BaSn}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}\text{O}_3$, что соответствует практически чистому BaSnO_3 . Вероятной причиной формирования стannата бария может быть присутствие на подложке примесных фаз простых оксидов титана (см. положения рефлексов для оксидов титана TiO и TiO_2 на рис. 1). Схожая ситуация при формировании твердого раствора титаната-цирконата бария описывается в [18].

Иной фазовый состав демонстрируют пленки, осажденные при пониженной концентрации кислорода. В газовой смеси Ar/O_2 с соотношением компонентов 50/50 образуется поликристаллическая пленка BSnT состава $\text{BaSn}_{0.68}\text{Ti}_{0.32}\text{O}_3$ с доминирующими ориентациями роста (111) и (211). Уменьшение содержания кислорода до 20% приводит к росту пленки BSnT с составом $\text{BaSn}_{0.58}\text{Ti}_{0.42}\text{O}_3$, близким к составу мишени, и текстурой роста (211), которая, по-видимому, может быть объяснена влиянием гексагональной структуры подложки сапфира r -среза. Дальнейшее уменьшение концентрации кислорода в газовой среде может привести к возникновению дефицита по кислороду в пленке [14] и представляется нецелесообразным.

На рис. 2 показано изменение углового положения рефлекса (211) для исследуемых образцов BSnT при изменении концентрации кислорода в газовой среде. Пунктирными линиями обозначены положения рефлекса (211) для чистого BaSnO_3 (BSO) и для состава распыляемой мишени (BSnT 5/5). Сдвиг рефлекса показывает изменение параметра элементарной ячейки, который уменьшается от 4.11 до 4.07 \AA при снижении содержания кислорода.

Таким образом, согласно данным рис. 1 и 2, а также данным [18], формирование твердых растворов с

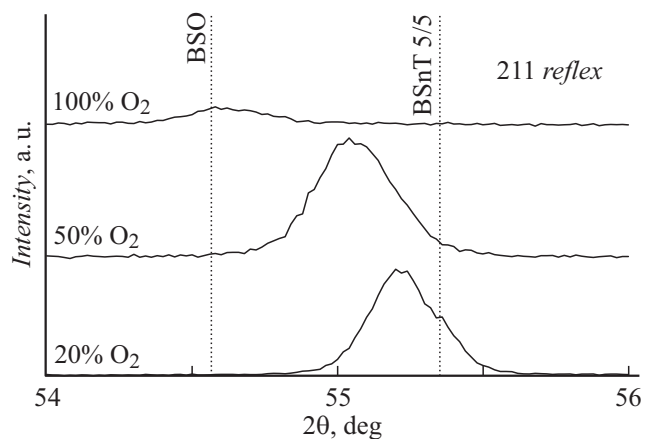


Рис. 2. Угловое положение рефлекса (211) для исследуемых образцов BSnT.

Сравнительные электрические характеристики планарных структур BSnT

Подложка	Состав	Управляемость	$\tan \delta$ (0 V)	Частота, MHz	Лит. ссылка
LaAlO ₃ (100)	BaSn _{0.15} Ti _{0.85} O ₃	1.55	~ 0.03	1	[15]
LaAlO ₃ (110)		1.69	~ 0.03		
LaAlO ₃ (111)		1.85	~ 0.03		
LaAlO ₃ (100)	BaSn _{0.15} Ti _{0.85} O ₃	1.21	~ 0.01	1	[16]
MgO(100)		1.16	~ 0.012		
Al ₂ O ₃ (<i>r</i> -срезу)	BaSn _{0.58} Ti _{0.42} O ₃	1.7	0.02	2000	Наст. раб. (80/20)
			0.08	60000	

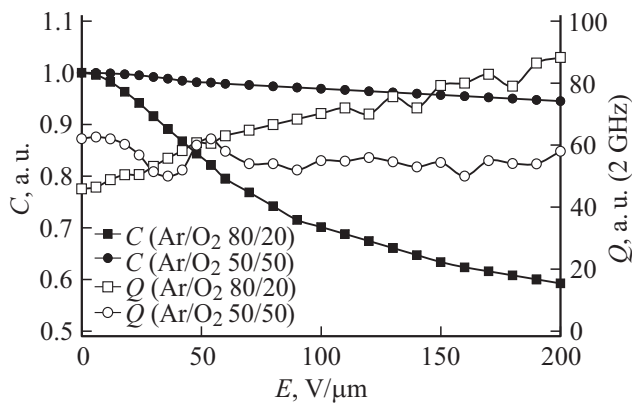


Рис. 3. Зависимость емкости и добротности планарных конденсаторов BSnT на сапфире от управляющего поля.

замещением позиции титана в ячейке перовскита на диэлектрических подложках в чисто кислородной среде затруднено, что, по-видимому, связано с наличием на подложке простых оксидов титана, скорость образования которых значительно превышает скорость формирования оксидов олова (окислительно-восстановительные потенциалы титана и олова в данном случае составляют -1.63 и -0.14 V соответственно). Увеличение содержания аргона в рабочем газе приводит к подавлению процесса образования простых оксидов титана и росту концентрации олова на подложке, что обусловлено уменьшением длины термализации Sn при рассеянии на тяжелых атомах Ar [19]. Данные факторы обеспечивают формирование твердого раствора BSnT на сапфире.

На рис. 3 представлены зависимости емкости и добротности планарных конденсаторов, сформированных на основе пленок BSnT на сапфире. Очевидно, что в данном случае нелинейность емкостных структур будет определяться компонентным составом пленок BSnT, который в свою очередь зависит от содержания кислорода в газовой среде. Из рис. 3 видно, что максимальная управляемость $n = 1.7$ достигается для пленок BSnT, осажденных при составе газовой смеси Ar/O₂ 80/20. При этом данные пленки проявляют высокую добротность от 45 до 90 ($\tan \delta$ от 0.022 до 0.011 соответственно)

на частоте 2 GHz. Пленки, осажденные при повышенной концентрации кислорода, демонстрируют минимальную нелинейность, что связано с большим содержанием в твердом растворе станната бария, являющегося линейным диэлектриком. Характеристики исследуемых конденсаторов в сравнении с результатами работ [15,16] представлены в таблице. Из данных таблицы следует, что полученные в настоящей работе конденсаторы проявляют перспективные для СВЧ-применений электрические характеристики на частотах вплоть до 60 GHz, что является лучшим результатом из опубликованных на данный момент для планарных емкостных структур на основе пленок BSnT.

Результаты проведенных исследований показали, что при осаждении пленок BSnT на сапфир в чистом кислороде на подложке формируется практически чистый станнат бария, что определяет отсутствие нелинейных диэлектрических свойств конденсаторов на основе данных пленок. Пленки, осажденные на сапфир в газовой смеси Ar/O₂, представляют собой твердый раствор BaSn_xTi_{1-x}O₃ с составом, зависящим от содержания кислорода. Для пленок BSnT на подложках Al₂O₃, осажденных в газовой среде Ar/O₂ с соотношением 80/20, компонентный состав, близкий к составу мишени, без включений вторичных фаз оказывает положительное влияние на их электрофизические свойства, в частности на нелинейность и уровень диэлектрических потерь. Сравнение полученных результатов с литературными данными показало, что планарные структуры BSnT на сапфире проявляют перспективные характеристики для создания на их основе управляемых СВЧ-устройств повышенного уровня рабочей мощности.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда в рамках проекта № 18-79-10156 и Министерства образования и науки РФ (государственное задание № 3.3990.2017/4.6).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] *Gevorgian S.* Ferroelectrics in microwave devices, circuits and systems. London: Springer, 2009. 396 p.
DOI: 10.1007/978-1-84882-507-9
- [2] *Вендик О.Г.* // ФТТ. 2009. Т. 51. В. 7. С. 1441–445.
DOI: 10.1134/S1063783409070543
- [3] *Luo C., Ji J., Ling F., Li D., Yao J.* // J. Alloys Compd. 2016. V. 687. P. 458–462. DOI: 10.1016/j.jallcom.2016.05.324
- [4] *Meyers C.J.G., Freeze C.R., Stemmer S., York R.A.* // Appl. Phys. Lett. 2016. V. 109. P. 112902. DOI: 10.1063/1.4961626
- [5] *Song L.R., Chen Y., Wang G.S., Yang L.H., Ge J., Dong X.L., Xiang P.H., Zhang Y.Y., Tang X.D.* // J. Am. Ceram. Soc. 2014. V. 97. P. 3048–3051. DOI: 10.1111/jace.13218
- [6] *Tumarkin A.V., Gagarin A.G., Altyinnikov A.G., Gaidukov M.M., Odinetz A.A., Razumov S.V., Kozyrev A.B.* // Thin Solid Films. 2015. V. 593. P. 189–192.
DOI: 10.1016/j.tsf.2015.09.057
- [7] *Tumarkin A.V., Stozharov V.M., Altyinnikov A.G., Gagarin A.G., Razumov S.V., Kaptelev E.Y., Senkevich S.V., Pronin I.P., Kozyrev A.B.* // Integr. Ferroelectrics. 2016. V. 173. P. 140–146. DOI: 10.1080/10584587.2016.1187055
- [8] *Wu M., Zhang C., Yu S., Li L.* // Ceram. Int. 2018. V. 44. P. 11466–11471. DOI: 10.1016/j.ceramint.2018.03.208
- [9] *Hoffmann S., Waser R.M.* // Integr. Ferroelectrics. 1997. V. 17. P. 141–152. DOI: 10.1080/10584589708012989
- [10] *Ihlefeld J.F., Borland W.J., Maria J.-P.* // J. Mater. Sci. 2008. V. 43. P. 4264–4270. DOI: 10.1007/s10853-008-2618-x
- [11] *Song S., Zhai J., Gao L., Yao X.* // Appl. Phys. Lett. 2009. V. 94. P. 052902. DOI: 10.1063/1.3073743
- [12] *Gao L., Zhai J., Song S., Yao X.* // Mater. Chem. Phys. 2010. V. 124. P. 192–195. DOI: 10.1016/j.matchemphys.2010.06.018
- [13] *Wu M., Zhang C., Yu S., Li L.* // Ceram. Int. 2018. V. 44. P. 10236–10240. DOI: 10.1016/j.ceramint.2018.03.026
- [14] *Huang H., Wang M., Chen C., Wu N., Lin H.* // J. Eur. Ceram. Soc. 2006. V. 26. P. 3211–3219.
DOI: 10.1016/j.jeurceramsoc.2005.09.109
- [15] *Song S., Gao L., Zhai J., Yao X., Cheng Z.* // Appl. Surf. Sci. 2008. V. 254. P. 5120–5123.
DOI: 10.1016/j.apsusc.2008.02.002
- [16] *Song S., Zhai J., Yao X.* // Mater. Res. Bull. 2008. V. 43. P. 2374–2379. DOI: 10.1016/j.materresbull.2007.08.006
- [17] *Razumov S.V., Tumarkin A.V., Gaidukov M.M., Gagarin A.G., Kozyrev A.B., Vendik O.G., Ivanov A.V., Buslov O.U., Keys V.N., Sengupta L.C., Zhang X.* // Appl. Phys. Lett. 2002. V. 81. P. 1675–1677. DOI: 10.1063/1.1499987
- [18] *Тумаркин А.В., Злыгостов М.В., Гагарин А.Г., Сапего Е.Н.* // Письма в ЖТФ. 2018. Т. 44. В. 23. С. 63–70.
DOI: 10.21883/PJTF.2018.23.47011.17476
- [19] *Тумаркин А.В., Вольяс В.А., Злыгостов М.В., Оди-нец А.А., Сапего Е.Н.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 3. С. 395–401. DOI: 10.7868/S0367676518030304