

© 1993

ОРИЕНТИРОВАННЫЙ РОСТ ПЛЕНОК SrTiO_3 ПРИ ВЧ-МАГНЕТРОННОМ РАСПЫЛЕНИИ

*Е. В. Балашова, Б. М. Гольцман, Т. П. Ефимова, Н. В. Зайцева,
Г. Н. Мосина, Л. М. Сорокин*

Рентгенодифракционным и электронно-микроскопическим методами исследована структура пленок титаната стронция, выращенных на подложках из кремния и сапфира ВЧ-магнетронным распылением. Показано, что в зависимости от интенсивности бомбардировки пленки частицами в плазме могут быть получены пленки с осевыми текстурами $\langle 111 \rangle$ или $\langle 100 \rangle$ либо пленки без текстуры. Образование текстур не связано с эпитаксиальным действием подложек. Отмечено, что бомбардировка ухудшает совершенство структуры пленок и их электрофизические характеристики.

Изучению особенностей роста пленок SrTiO_3 , материала, перспективного благодаря высокой диэлектрической проницаемости, уделено внимание ряда исследователей [1-6]. Наблюдалось образование текстуры в этих пленках на подложках Si (100) [4], вызванное эффектом эпитаксии. В то же время представляет интерес исследовать возможности ориентированного роста пленок SrTiO_3 , не связанного с эпитаксиальным влиянием подложки.

Одной из причин возникновения роста такого типа может быть анизотропия скорости роста кристаллических зерен. В условиях катодного распыления ориентированный рост может также стимулироваться распылением пленки при бомбардировке ее частицами, выбитыми из мишени. По данным [7], относящимся к распылению ZnO и BaTiO_3 , это преимущественно отрицательные ионы кислорода, ускоряемые в темном катодном пространстве и достигающие пленки в нейтрализованном или заряженном состоянии. Распыление пленок BaTiO_3 и $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ такими частицами, согласно [8], приводит к образованию осевой текстуры $\langle 100 \rangle$, что объясняется наибольшей устойчивостью к распылению кристаллических зерен с ориентацией $\langle 100 \rangle$.

В настоящей работе пленки SrTiO_3 были получены методом ВЧ-магнетронного распыления на частоте 13.6 МГц с помощью планарного магнетрона. Пленки напылялись на подложки из кремния (001) и (111) (без очистки поверхности подложки от естественного слоя SiO_2) и сапфира (0112). Температура подложки и давление рабочего газа $\text{Ar}-\text{O}_2$ ($P_{\text{Ar}}/P_{\text{O}_2}$ 5/1) были соответственно равны 650 °C и 2.7 Па. Подложкодержатель был электрически изолирован. Толщина пленок лежала в пределах 0.8—1.9 мкм.

Напыление производилось в следующих вариантах:

а) Подложкодержатель располагался на оси магнетрона и обеспечивал одновременное напыление на две подложки, причем поверхность одной из них была обращена к мишени, а поверхность другой была ориентирована перпендикулярно мишени (рис. 1, а).

б) Подложкодержатель находился на оси магнетрона над окном в электрически изолированном электроде, причем размеры окна были достаточно большими, чтобы не экранировать подложку от мишени (рис. 1, б).

в) Подложкодержатель находился в стороне от оси магнетрона (рис. 1, в).

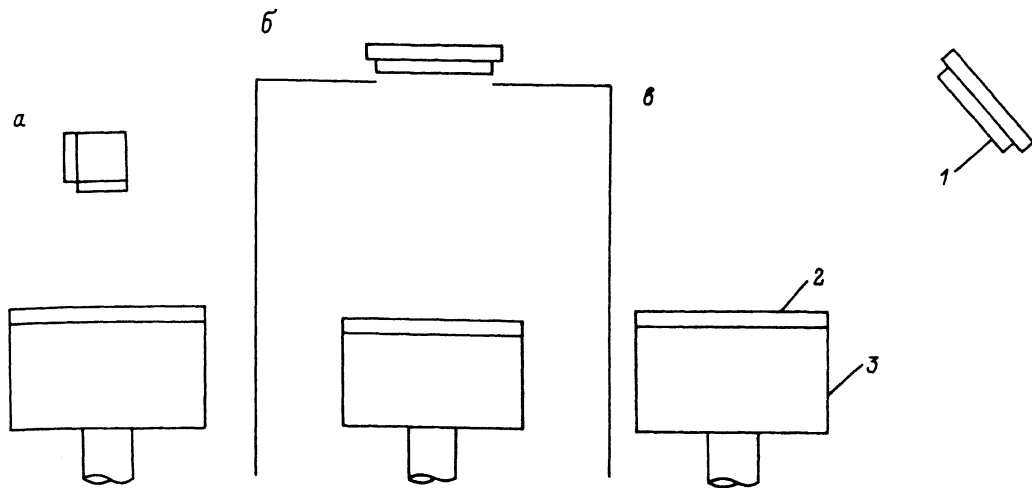


Рис. 1. Схемы напыления.

а — напыление на подложках с разной ориентацией, б — напыление с дополнительным электродом, в — напыление со смещенной подложкой. 1 — подложка, 2 — мишень, 3 — магнетрон, 4 — электрод.

Электрод, использованный в варианте б), существенно влиял на скорость роста пленки: при напылении с электродом скорость роста составляла 0.038 нм/с, без него — 0.11 нм/с. Это объясняется концентрацией плазмы у краев отверстия в электроде, вызывающей дополнительное распыление пленки ионами аргона и кислорода.

Осевая текстура пленок определялась по относительному усилению рентгеновских дифракционных максимумов (hkl). Съемка производилась на рентгеновском аппарате ДРОН-2 (излучение CuK_α) с использованием приставки ГП-4 для порошковых методов. Было установлено, что все без исключения пленки на подложках, располагавшихся в стороне от оси магнетрона (15 напылений), имели сильно выраженную осевую текстуру $\langle 111 \rangle$: отношение интенсивностей J линий $\langle 111 \rangle$ и $\langle 110 \rangle$ достигало значений $J \langle 111 \rangle / J \langle 110 \rangle = 3.9$ (для полностью разориентированного поликристалла титаната стронция $J \langle 111 \rangle / J \langle 110 \rangle = 0.28$). В пленках на подложках, расположенных на оси магнетрона, в отдельных случаях наблюдалась текстура $\langle 111 \rangle$, в других случаях пленки не имели преимущественной ориентации кристаллических зерен. При введении дополнительного электрода были получены пленки, либо не имеющие текстуры, либо имеющие текстуру $\langle 100 \rangle$, менее выраженную, чем текстура $\langle 111 \rangle$, отмеченная выше: отношение интенсивностей $J \langle 100 \rangle / J \langle 110 \rangle$ составляло 0.54 (для полностью разориентированного поликристалла $J \langle 100 \rangle / J \langle 110 \rangle = 0.37$).

Образование текстуры $\langle 111 \rangle$, возможно, объясняется анизотропией скорости роста кристаллических зерен титаната стронция. В пленках на подложках, расположенных на оси магнетрона, эта текстура может разрушаться под действием бомбардировки частицами, распространяющимися от мишени. Усиление бомбардировки при введении электрода, концентрирующего плазму вблизи пленки, приводит к образованию текстуры $\langle 100 \rangle$ в соответствии с механизмом, предложенным в работе [8].

Электронно-микроскопическое исследование на просвет пленок после их утоньшения бомбардировкой ионами Ag показало существенную зависимость структуры от условий напыления. При напылении в варианте а) в пленке на подложке, обращенной к мишени, образуется мелкозернистая структура с размерами кристаллических зерен менее 0.2 мкм (рис. 2, а). В случае бокового

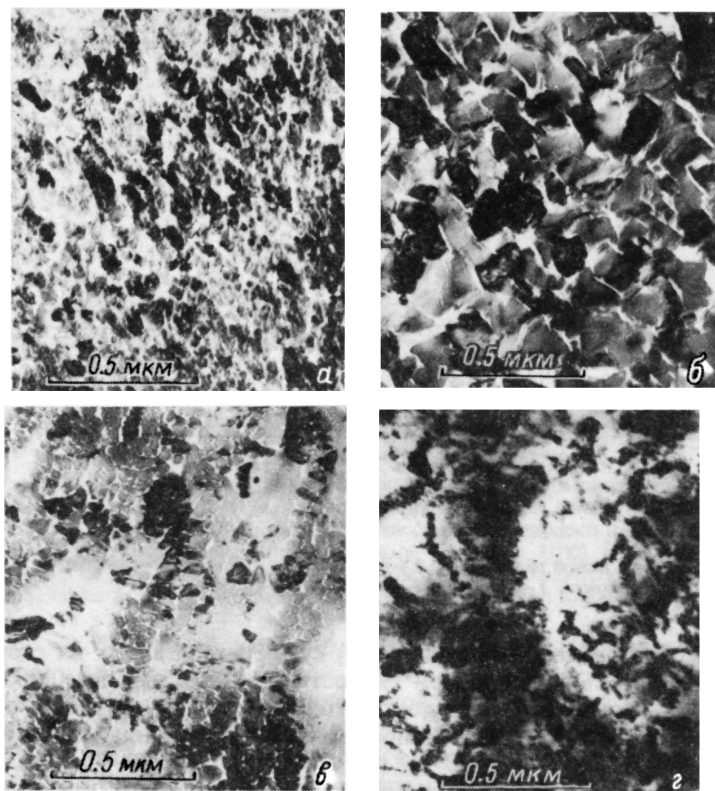


Рис. 2. Микроструктура пленок, полученных в разных вариантах напыления. *а* — вариант *а*), нижнее положение подложки; *б* — вариант *а*), боковое положение подложки; *в* — вариант *в*); *г* — вариант *б*).

положения подложки зерна значительно крупнее (до 0.7 мкм) (рис. 2, *б*). Видна тенденция к выстраиванию их вдоль определенного направления, что можно связать со «скользящим» по поверхности пленки потоком частиц от мишени, создающим направленный рост пленки. Эти результаты согласуются с данными для пленок $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ работы [8]. Наблюдаемое сильное различие размеров зерен пленок на подложках с разной ориентацией объясняется уменьшением размеров зерен пленки, обращенной к мишени, из-за большей скорости роста (0.19 нм/с по сравнению с 0.14 нм/с для бокового положения) и более интенсивной бомбардировки частицами со стороны мишени. С другой стороны, размеры зерен пленки при боковом положении подложки могут увеличиваться из-за направленного характера роста. В пленках, напыленных при боковом положении подложки, в зернах относительно больших размеров наблюдается тонкая структура в виде светлых, приблизительно параллельных линий. Это области более интенсивного ионного травления при утоньшении образцов. Они могут отражать присутствие в зернах полос скольжения, микротрещин или границ блоков. Пленка, полученная при скорости роста 0.11 нм/с на подложке, расположенной в стороне от оси магнетрона, содержала приблизительно равноосные кристаллические зерна размерами 0.2—0.3 мкм (рис. 2, *в*).

Интенсивная бомбардировка под действием электрода при напылении в варианте *б*) приводила, несмотря на низкую скорость роста, к образованию мелкозернистой структуры (размеры зерен до 0.2 мкм; рис. 2, *г*). Влияние бомбардировки проявлялось также в том, что на изображении этих пленок виден неоднородный контраст (пятна размером 0.5 мкм), связанный с вариацией

толщины образца. Бомбардировка пленки под влиянием электрода приводила к ухудшению совершенства структуры пленок, проявлявшемуся в увеличении полуширины рентгеновских дифракционных линий (110) от 6'—8' пленок в варианте в) до 16' в варианте б).

При напылении в варианте б) наблюдалось также значительное увеличение постоянной решетки a до значения $a = 3.961 \text{ \AA}$ по сравнению с величиной $a = 3.905 \text{ \AA}$ для монокристаллического титаната стронция. Менее значительный рост постоянной решетки имел место для пленок, напыленных в варианте в): на сапфире $a = 3.911 \text{ \AA}$, на кремнии $a = 3.915 \text{ \AA}$. Эти величины приблизительно согласуются с оценками упругих деформаций, возникающих при охлаждении системы пленка—подложка после напыления. Однако термическое растяжение недостаточно велико, чтобы вызвать рост постоянной решетки, наблюдаемый в варианте б). По-видимому, этот рост связан с вызванным бомбардировкой ухудшением упорядоченности структуры пленки, например внедрением атомов аргона или нарушением стехиометрического состава.

Измерения диэлектрической постоянной ϵ и тангенса угла потерь $\text{tg } \delta$ пленок на кремниевых подложках показали, что интенсивная бомбардировка пленок при напылении в варианте б) заметно ухудшает их электрические характеристики: по сравнению со значениями для пленок на таких же подложках, выращенных в варианте в), равными $\epsilon = 170$, $\text{tg } \delta = 0.05$, для пленок в варианте б) были получены значения $\epsilon = 125$, $\text{tg } \delta = 0.19$.

Таким образом, в работе показано, что наличие и характер преимущественной ориентации кристаллических зерен в пленке титаната стронция, получаемых ВЧ-магнетронным распылением, зависят от интенсивности бомбардировки пленки. Одновременно бомбардировка влияет на совершенство структуры и электрофизические характеристики пленки.

Работа выполнена в рамках проекта 802 Государственной программы по ВТСП.

Список литературы

- [1] Pennebeker W. B. // JBM J. Res. Develop. 1969. V. 13. N 6. P. 686—695.
- [2] Sakuma T., Yamamichi S., Matsubara S., Yamaguchi H., Miyasaka Y. // Appl. Phys. Letters. 1990. V. 57(23). P. 2431—2433.
- [3] Вендик О. Г., Ильинский Л. С., Смирнов А. Д., Хижа Г. С. / ЖТФ. 1984. Т. 54. № 4. С. 772—777.
- [4] Mori H., Jshiwara H. // Japanese J. Appl. Phys. 1991. V. 30. N 8a. P. L1415—1417.
- [5] Yamamichi S., Sakuma T., Takemura K., Miyasaka Y. // Japanese J. Appl. Phys. 1991. V. 30. N 9b. P. 2193—2196.
- [6] Yamaguchi H., Matsubara S., Miyasaka Y. // Japanese J. Appl. Phys. 1991. V. 30. N 9b. P. 2197—2199.
- [7] Tominaga K., Jwamura S., Shintani Y., Tada O. // Japanese J. Appl. Phys. 1982. V. 21. N 5. P. 688—695.
- [8] Surowiak Z., Margolin A. M., Zaharchenko J. N., Biryukov S. V. // Thin Solid Films. 1989. V. 176. N 2. P. 227—246.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе РАН
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию
23 сентября 1992 г.