

Особенности формирования тонких сегнетоэлектрических пленок $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ на различных подложках методом высокочастотного распыления

© М.С. Иванов, М.С. Афанасьев

Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики (Технический университет), Москва, Россия

E-mail: IvanovMaksim@list.ru

Методом высокочастотного катодного распыления керамической мишени стехиометрического состава на установке магнетронного распыления получены эпитаксиальные тонкие пленки твердых растворов $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ на монокристаллических подложках MgO (001) и NdGaO₃ (011). Определены основные качественные различия оптических, структурных и электрических свойств полученных сегнетоэлектрических пленок, выявлена их существенная зависимость от выбора подложки.

PACS: 73.61-г, 78.20-е

1. Введение

Системы, включающие в себя тонкие сегнетоэлектрические пленки, представляют собой один из перспективных классов гетероструктур с точки зрения их практического применения, обусловленного высокой диэлектрической проницаемостью, большими значениями пиро- и пьезоэлектрических модулей, а также наличием в них линейного и квадратичного электрооптических эффектов. Все преимущества сегнетоэлектрических пленок, включая и определяющее физическое свойство сегнетоэлектриков — явление переключения спонтанной поляризации, делают их перспективными для применения в микроэлектромеханических системах. Однако существующие в настоящее время технологии не обеспечивают контролируемого и воспроизводимого роста пленок в наноразмерном диапазоне толщин. Поэтому задача поиска метода, режима и материала подложки для изготовления сегнетоэлектрических структур оптимального состава является одной из актуальных задач физики твердого тела.

В настоящей работе представлены результаты исследования тонких сегнетоэлектрических пленок $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ (BST), осажденных на подложки MgO и NdGaO₃ (NGO) методом высокочастотного распыления. Подложки MgO (001) и NGO (011) выбраны из расчета оптимального совпадения постоянной решетки с осаждаемыми на них тонкими пленками BST. Результат такого выбора — незначительное влияние растягивающих механических напряжений в пленках толщиной свыше 100 nm, что очень важно для получения качественно структурированных пленок [1]. Стоит отметить тот факт, что подложка NGO обладает большей по сравнению с MgO химической инертностью при нагревании и осаждении пленок BST. В ряде работ было описано возрастание емкости в конденсаторной структуре при использовании гетероструктур на основе данной подложки [2]. Однако при сравнении качества структурированности пленок лидирующее положение занимают пленки, полученные на

подложке MgO. Таким образом, возникает естественный процесс отбора наилучшего решения для промышленного производства.

2. Синтез и структура пленок

В ходе эксперимента гетероэпитаксиальные тонкие пленки твердых растворов $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ на монокристаллических подложках MgO (001) и NGO (011) были получены с помощью высокочастотного катодного распыления керамической мишени стехиометрического состава на установке магнетронного распыления STE MS 46 с целью определения основных качественных различий оптических, структурных и электрических свойств полученных сегнетоэлектрических пленок и их зависимости от выбора подложки. В ходе эксперимента температура подложек составляла 700°C, давление в камере поддерживалось на уровне 10^{-2} Pa, время распыления стехиометрической мишени с соотношением $x = 0.8$ составляло 20 min.

Исследование кристаллической структуры и фазового состава пленок проводилось методом рентгеноструктурного анализа на дифрактометре D 500 Pulverdiffraktometр (Siemens). Целью являлась идентификация структурных компонентов в составе напыленных пленок по набору их межплоскостных расстояний и относительным интенсивностям соответствующих линий на рентгенограмме, а также определение качества структурированности пленок. Для этого, согласно закону Брэгга–Вульфа, необходимо найти углы отражения θ .

Анализ дифрактограмм пленок, полученных методом ВЧ-распыления, представлен на рис. 1, *a, b*. При согласованном вращении счетчика и образца (метод $\theta-2\theta$) регистрировались только разные порядки, текстуры отражения (001) и (011), что указывает на ориентирующее влияние подложек MgO и NGO при росте пленок. Текстуры отражения соответствуют межплоскостному расстоянию c , т.е. обе пленки c -доменные. Параметры элементарной ячейки вдоль нормали к поверхности

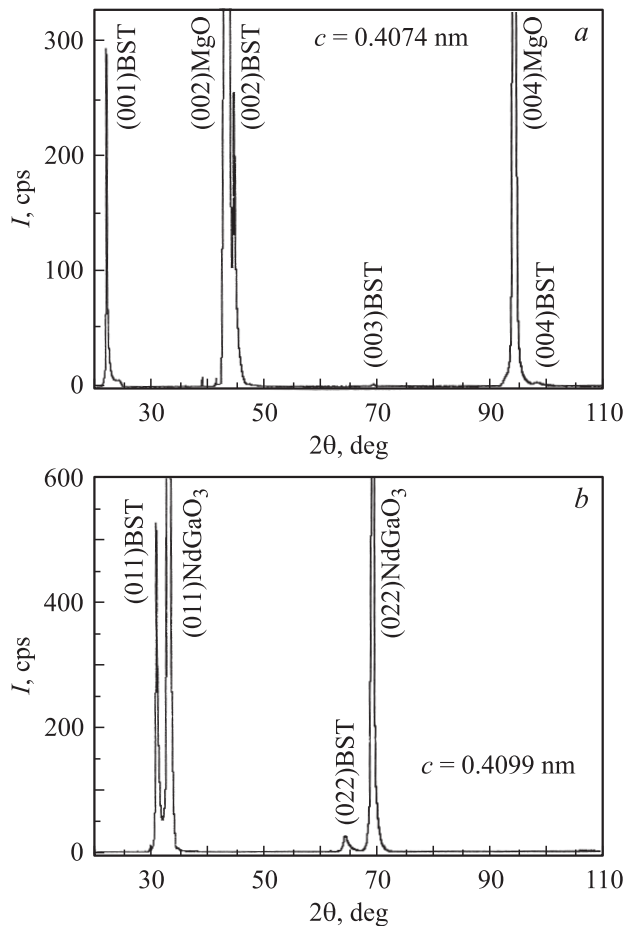


Рис. 1. Рентгенограммы структур BST/MgO (500) (a) и BST/NGO (500) (b).

подложки соответствуют $c = 0.4074$ nm для структуры BST/MgO и $c = 0.4099$ nm для структуры BST/NGO, что больше, чем для объемного образца. Все это свидетельствует о том, что пленки не имеют примесных фаз. Соотношение интенсивностей рентгеновских линий также отличается от случая объемного образца. Данный факт можно объяснить тем, что пленки являются тонкими (ненасыщенный слой), и в них присутствуют точечные дефекты: вакансии или внедренные атомы.

3. Исследование электрофизических характеристик структур

В измерении диэлектрических характеристик применялась автоматизированная система АН 2500А (1 kHz Automatic Capacitance Bridge) фирмы ANDEEN-HAGERLING. Для этого на поверхность пленок BST методом термического распыления наносили планарные золотые электроды с зазором $20 \mu\text{m}$. Величина измерительного напряжения составляла 0.1 В. Проведенные измерения показали, что температурные зависимости действительной части комплексной диэлек-

трической проницаемости имеют максимум при температуре 276°C для структуры BST/MgO и 260°C для структуры BST/NGO, что соответствует сегнетоэлектрическому фазовому переходу. Наличие температурного гистерезиса точки Кюри подтверждает предположение о фазовом переходе в синтезированных пленках.

На рис. 2 представлены температурные зависимости действительной части диэлектрической проницаемости для структур BST/MgO и BST/NGO. Как видно из представленных графиков, дисперсия диэлектрической проницаемости наблюдается во всем исследуемом температурном интервале — как в сегнетоэлектрической, так и в паразелектрической фазе. Наибольшая дисперсия наблюдается при температуре фазового перехода. На рис. 3 представлена зависимость емкостных параметров структур от температуры, из которой видно, что наибольшую емкость имеет структура на подложке NGO, что дает преимущество при использовании структур BST/NGO в устройствах на основе емкостных зависи-

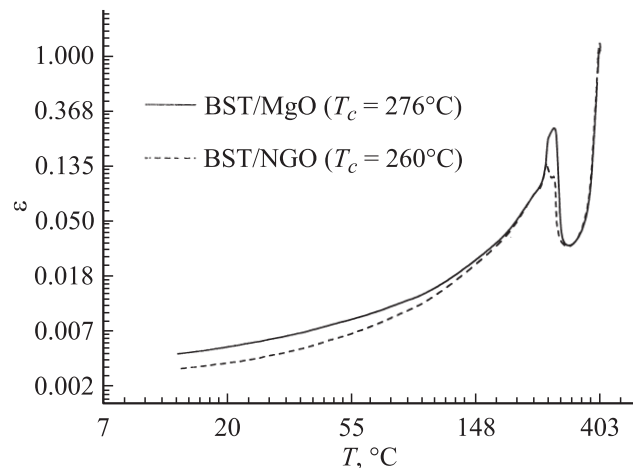


Рис. 2. Температурная зависимость диэлектрических потерь для структур BST/MgO и BST/NGO.

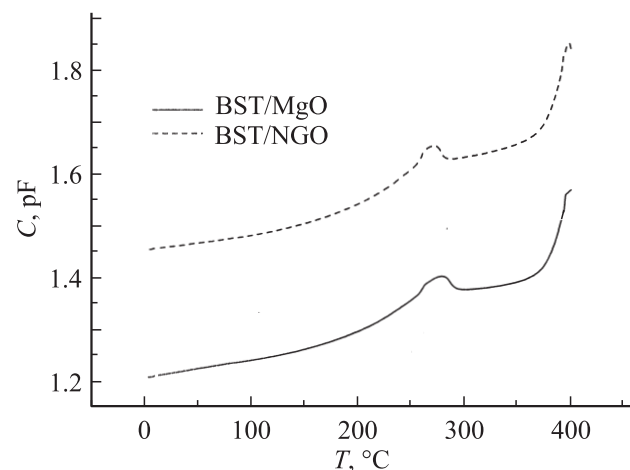


Рис. 3. Температурная зависимость емкостных параметров для структур BST/MgO и BST/NGO.

мостей. При температурах 276 и 260°C наблюдается фазовый переход, аналогичный показанному на рис. 1.

4. Исследование нелинейно-оптических свойств структур методом генерации второй оптической гармоники

Метод генерации второй оптической гармоники (ГВГ) является бесконтактным неразрушающим методом, позволяющим исследовать кристаллографическую и доменную структуру тонких сегнетоэлектрических пленок. Такое исследование может быть распространено на микроскопический уровень при использовании соответствующей оптики. Эта методика позволяет изучать свойства и контролировать формирование сегнетоэлектрических наноструктур, в частности устанавливать соотношение параэлектрической и сегнетоэлектрической фаз. Кроме того, методика ГВГ не зависит от состояния образца и его макропараметров, не требует создания особых условий эксперимента (вакуума, температуры и т.д.), а также сравнительно легко адаптируется к конкретным задачам диагностики [2].

Исследования сегнетоэлектрических свойств основаны на связи интенсивности второй гармоники (ВГ) $I_{2\omega}$ с сегнетоэлектрической поляризацией

$$I_{2\omega} \propto P_{bg}^2 + \alpha(P_0 + P(E_0))^2,$$

где P_{bg} — некогерентная составляющая не зависящей от внешнего поля (непереключаемой) части поля ВГ; P_0 и $P(E_0)$ — соответственно непереключаемая (когерентная составляющая не зависящей от внешнего поля части поля ВГ) и переключаемая сегнетоэлектрические поляризации. Таким образом, квадратный корень из интенсивности ВГ является мерой сегнетоэлектрической поляризации, что позволяет дать оценку характера переключения. Уменьшение переключаемой части поляризации относительно непереключаемой приводит к асимметризации петли вплоть до вырожденного „квазилинейного“ типа [3].

Для исследования методом ГВГ была использована установка на основе фемтосекундного лазера на кристалле сапфира, допированного ионами титана, с длительностью импульса 100 fs, частотой повторения 100 МГц, длиной волны 800 nm и средней мощностью излучения 500 mW. Излучение фокусировалось в плоскости образца в пятно диаметром 50 μm , а затем на частоте ВГ регистрировалось при помощи системы, работающей в режиме счета фотонов. К образцам прикладывалось пилообразное напряжение амплитудой 30 V с частотой от 10 mHz до 1 kHz. Для этого на их поверхность были нанесены золотые электроды, позволяющие прикладывать поле в плоскости пленки. Зазор между электродами, в который фокусировался лазерный

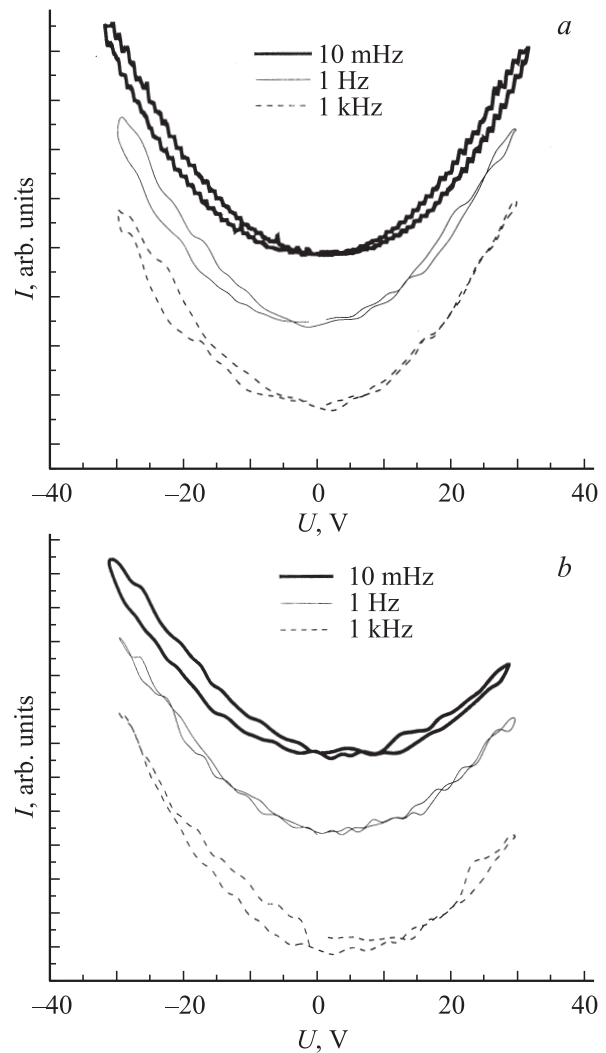


Рис. 4. Зависимость интенсивности ВГ от приложенного переменного напряжения различной частоты для структур BST/MgO (a) и BST/NGO (b).

луч, составлял 20 μm . Все измерения проводились в геометрии „на просвет“.

На рис. 4, a, b представлены зависимости сегнетоэлектрического отклика пленок структур BST/MgO и BST/NGO от приложенного напряжения. Анализируя полученные результаты, видим, что сегнетоэлектрический гистерезис структур BST/MgO и BST/NGO проявляется очень слабо и только на частоте 10 mHz, что соответствует результатам проведенных ранее экспериментальных исследований аналогичных структур, в которых нелинейно-оптический гистерезис наблюдался также только при малых частотах (порядка 10 mHz) [4]. Однако все синтезированные пленки демонстрируют хорошие модуляционные свойства и могут работать в режиме оптического модулятора. Анализ частотной зависимости структур показывает, что петли пленок BST на подложке MgO более симметричны и в большей степени зависят от частоты переменного электрического

поля. Для пленок на подложке NGO существенное влияние может оказывать непереключаемая доля поляризации, что выражается в асимметричности сегнетоэлектрических петель и смещении частотных зависимостей структуры BST/NGO относительно нуля.

Список литературы

- [1] Ю.И. Юзюк, И.Н. Захарченко, В.А. Алешин, И.Н. Леонтьев, Л.М. Рахим, В.М. Мухортов, Р. Simon. ФТТ **49**, 9, 1676 (2007).
- [2] Ю.А. Бойков, З.Г. Иванов, Д. Эртс, И.П. Пронин, Т. Классон, Т.А. Шаплыгина. ФТТ **39**, 4, 683 (1997).
- [3] Н.Э. Шерстюк. Автореф. канд. дис. М. (2005).
- [4] М.А. Кузнецов, Е.Д. Мишина, А.И. Морозов, А.С. Сигов, Ю.И. Головкин, В.М. Мухортов, В.Т. Мошняга. Нано- и микросистемная техника **12**, 20 (2007).