

Конденсаторные структуры на основе пленок титаната стронция

© А.В. Тумаркин, М.М. Гайдуков, С.В. Разумов, А.Г. Гагарин

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет „ЛЭТИ“,
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Avtumarkin@yandex.ru

Исследованы структурные свойства пленок титаната стронция и электрофизические параметры конденсаторов на их основе. Установлено, что температура осаждения оказывает прямое влияние на фазовый состав пленок, совершенство кристаллической структуры, внутренние напряжения в решетке. Пленки титаната стронция, осажденные при температуре 800°C , являются однофазными, имеют достаточно совершенную кристаллическую структуру и минимальные внутренние напряжения. Показано, что конденсаторные структуры на основе ориентированных пленок титаната стронция обеспечивают двукратное уменьшение уровня диэлектрических потерь по сравнению с аналогичными структурами на основе пленок из твердого раствора титаната бария-стронция на частоте 1.5 GHz.

Работа выполнена в рамках государственных контрактов № 02.740.11.0231; 02.740.11.0465; П 1233; П 689; П 909; П 628 и при поддержке АБЦП „Развитие научного потенциала высшей школы“ № 2.1.2/9994.

В настоящее время активно ведутся исследования по созданию устройств на основе сегнетоэлектрических (СЭ) пленок для сверхвысокочастотных (СВЧ) систем. Использование СЭ тонких пленок позволяет улучшить такие характеристики СВЧ приборов как быстродействие, рабочая мощность, потери и мощность управления [1].

Наиболее широко исследованным СЭ материалом для использования в устройствах СВЧ является твердый раствор титаната бария-стронция (BSTO) в параэлектрическом состоянии. На основе BSTO-пленок сегодня реализованы такие устройства как варакторы, фазовращатели, перестраиваемые фильтры, фазированные антенные решетки [2–4].

Тем не менее сдерживающими факторами для широкого использования устройств СВЧ на основе BSTO-пленок являются процессы медленной релаксации емкости (C) при воздействии униполярных импульсов управления и уровень диэлектрических потерь на сверхвысоких частотах, хотя и меньший, чем у полупроводниковых аналогов, но осложняющий разработку СВЧ управляемых сегнетоэлектрических устройств [5,6].

В последнее время активно рассматриваются возможности использования пленок титаната стронция (STO) для разработки СВЧ-приборов, работающих при комнатных температурах, наряду с пленками BSTO. Относительно низкий уровень диэлектрических потерь ($\text{tg } \delta$) в широком диапазоне частот делают пленки STO перспективным материалом для создания микроэлектронных СВЧ-устройств. В настоящее время возможности использования пленок STO для СВЧ-применений при комнатной температуре продемонстрированы в [7,8]. Основным недостатком пленок STO по сравнению с BSTO является необходимость использования высоких управляющих напряжений для достижения приемлемой управляемости (для конденсаторов на основе STO — обычно $C(0\text{V})/C(300\text{V}) \approx 2$ [9]). Таким образом, СВЧ-приборы на основе пленок STO способны конкурировать с аналогичными BSTO-устройствами за счет конструктивных решений, способных увеличить управляемость

(например, уменьшение зазора конденсатора) при одновременном сохранении диэлектрических потерь на уровне, не превышающем $\text{tg } \delta = 0.02$ на частоте 1 GHz при комнатной температуре [10].

Из предыдущих исследований известно, что пленочные образцы STO, близкие по структурным характеристикам к монокристаллу, проявляют и наилучшие электрофизические свойства, в частности, низкий уровень СВЧ потерь [8]. Следовательно, исследования, направленные на получение монокристаллических пленок STO, оправданы и с точки зрения их СВЧ свойств. Таким образом, создание плоскопараллельных конденсаторных структур, не требующих высоких управляющих напряжений, на основе ориентированных пленок STO является актуальной и перспективной исследовательской задачей.

В данной работе представлены результаты исследования таких параметров пленок STO, как фазовый состав, ориентация кристаллитов и внутренние напряжения в решетке в зависимости от температуры осаждения, а также данные электрофизических исследований конденсаторных структур на основе пленок, близких по структуре к объемному монокристаллу.

Исследуемые в работе пленки SrTiO_3 были получены методом ВЧ-магнетронного распыления стехиометрической мишени SrTiO_3 диаметром 76 mm. Расстояние мишень — подложка составляло 35 mm. Осаждение проводилось на подложки сапфира (r -срез), при температурах (T_s) от 600° до 800°C . Контроль температуры осуществлялся с помощью термопары, размещенной под подложкодержателем. В качестве рабочего газа использовалась смесь аргона и кислорода. Мощность разряда составляла $\sim 100\text{ W}$, давление рабочего газа — 3.5 Pa. После осаждения пленки охлаждались в атмосфере чистого кислорода со скоростью 2–3 $^\circ\text{C}/\text{min}$. Толщина пленок составляла $\sim 200\text{ nm}$.

Фазовый состав и внутренние напряжения полученных пленок исследовались методом рентгеновской дифрактометрии (монокроматизированным CuK_α -излучением) на установке „Geigerflex“ Rigaku-D/max. Объем

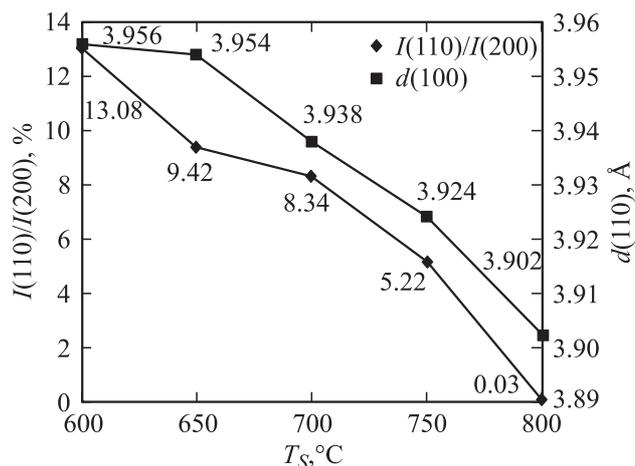


Рис. 1. Зависимость отношения интенсивностей пиков, соответствующих фазам (110) и (200) и межплоскостного расстояния $d(100)$ от температуры осаждения пленок STO.

монокристаллической фракции и характер структурных дефектов полученных пленок STO оценивались методом рассеяния ионов средних энергий (РИСЭ). Данный метод является модификацией метода Резерфордского обратного рассеяния ионов (РОР) и отличается от последнего диапазоном энергий ионов зондирующего пучка (единицы-десятки MeV в РОР и десятки-сотни keV в РИСЭ), что позволяет за счет применения электростатических анализаторов энергий обратно рассеянных ионов получить высокое (до 0.5 nm), разрешение по глубине исследуемого образца.

Для электрофизических исследований на основе пленок STO были сформированы плоскопараллельные конденсаторные структуры. Нижний электрод осаждался методом магнетронного распыления Pt-мишени, толщина нижнего электрода ~ 100 nm. После осаждения СЭ-пленки проводилась ее литография путем химического травления в смеси кислот HF-HNO₃. Верхние электроды были изготовлены нанесением пленки Си толщиной 1 μm . Размеры рабочей области конденсатора (перекрытия) $5 \times 10 \mu\text{m}$. Зазор между верхними электродами конденсатора 5 μm . Измерения СВЧ-характеристик (емкость C и потери $\text{tg } \delta$) конденсаторов были проведены резонансным методом на частоте 1.5 GHz [11].

Структурное совершенство пленок STO определяется наличием в них блоков одной или нескольких ориентаций, дефектами внутри блоков той или иной ориентации, величинами деформации растяжения или сжатия решеток.

Согласно данным рентгеноструктурного анализа в полученных пленках наблюдалось преимущественное содержание зерен двух ориентаций: (100) и (110) соотношение которых изменялось в зависимости от температуры осаждения. Из рис. 1 видно, что с увеличением температуры осаждения объем, занимаемый зернами с ориентацией (110) в пленке, уменьшается практически до 0, т.е. пленка становится полностью (100)-ориенти-

рованной. Данный объем оценивался сравнением интенсивностей рефлексов (110) и (200), нормированных на соответствующие интенсивности рефлексов от порошковых ненапряженных образцов.

В температурном диапазоне 600–650 $^\circ\text{C}$ межплоскостное расстояние $d(100)$, характеризующее наличие напряжений растяжения или сжатия решетки, т.е. структурное совершенство фазы (100), составляло ~ 3.955 Å. С ростом температуры наблюдалось его уменьшение вплоть до ~ 3.902 Å при 800 $^\circ\text{C}$, что близко к значению межплоскостного расстояния в объемном образце STO ($d(100)$ объемного образца = 3.905 Å), и указывает на фактическое отсутствие деформаций решетки в зернах ориентации (100) (рис. 1).

Ширина дифракционного пика (200) на середине высоты от максимума, полученная по результатам ω -сканирования и позволяющая судить о размерах кристаллитов с ориентацией (100), с ростом температуры осаждения уменьшается, что свидетельствует об улучшении качества структуры в направлении (100). При температуре осаждения пленок 800 $^\circ\text{C}$ ширина пика (200) составила $\sim 0.67^\circ$ (для монокристаллического SrTiO₃ ширина пика (200) составляет 0.3°), что свидетельствует об увеличении размеров кристаллитов ориентации (100) с ростом температуры синтеза и подтверждает сделанный по анализу межплоскостных расстояний вывод об уменьшении внутренних деформаций в пленке.

Для оценки структурного совершенства пленок STO методом РИСЭ были получены энергетические спектры рассеянных ионов в режиме каналирования $Y_c(E)$ и при произвольной ориентации $Y_r(E)$ для каждого образца. Сопоставление этих спектров позволяет оценить наличие монокристаллической фракции в образцах по величине $\chi = Y_c(E)/Y_r(E)$, которая тем меньше, чем больший объем занимает монокристаллическая фаза.

Спектры STO/Al₂O₃ показывают наличие монокристаллической фракции STO с ориентацией оси по направлению нормали к поверхности. Доля монокристаллической фракции возрастает с увеличением температуры осаждения. Слабая зависимость χ от глубины для STO-пленок свидетельствует о протяженном характере дефектов (текстурирование, поликристаллическая фракция), поскольку для точечных дефектов характерно выраженное нарастание этого отношения с ростом глубины. Итоговая зависимость отношения каналированного и случайного спектров χ от температуры осаждения пленок приведена на рис. 2. Отношение каналированного и случайного спектров обратно рассеянных легких ионов от монокристалла титаната стронция (идеальный кристалл) составляет 0.3 [12]. Повышение температуры осаждения выше 800 $^\circ\text{C}$ представляется нецелесообразным, так как приведет к появлению напряжений сжатия решетки STO (см. рис. 1).

Результаты структурного анализа полученных пленок показывают, что пленки, осажденные при температуре 800 $^\circ\text{C}$, проявляют свойства, близкие к свойствам объемного STO, т.е. являются преимущественно ориентированными, с минимальными внутренними напряжениями.

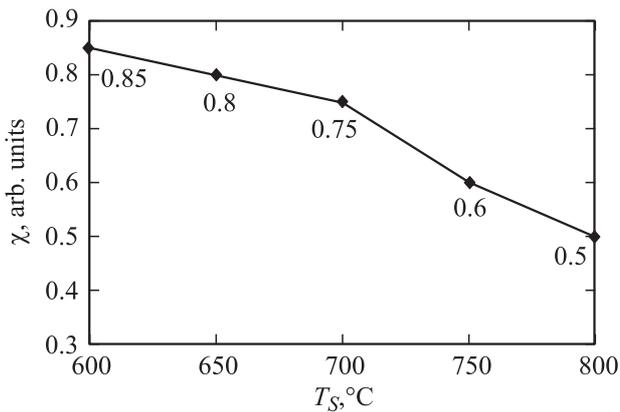


Рис. 2. Зависимость отношения каналированного и случайного спектров РИСЭ от температуры осаждения пленок STO.

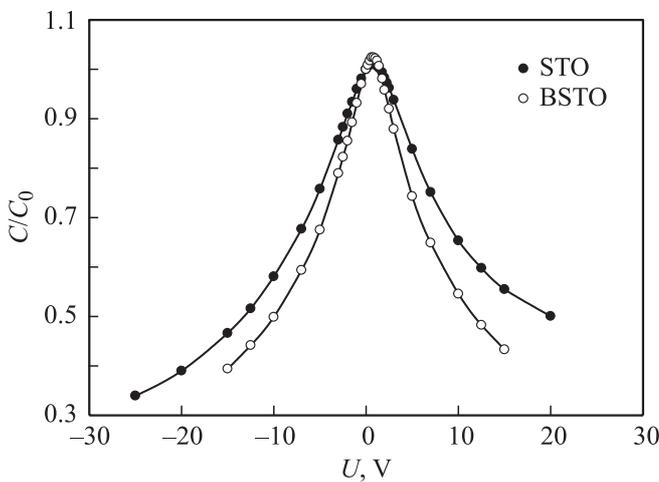


Рис. 3. Сравнительные вольт-фарядные характеристики STO- и BSTO-конденсаторов.

Электрофизические исследования проводились для пленок, полученных при температуре осаждения 800°C и обладающих наилучшими структурными характеристиками в исследованном диапазоне температур осаждения.

На рис. 3 приведены сравнительные вольт-фарядные характеристики конденсаторов на основе пленок STO и BSTO. Видно, что величина управляемости $K = C(0)/C(U_{\text{уп}})$ STO-конденсаторов практически не уступает управляемости структур BSTO и достигает 2 при подаче напряжения 20 V. Максимум емкости (эффективной диэлектрической проницаемости) смещен в область положительных управляющих напряжений на платиновом электроде для обоих образцов, что, по видимому, может быть объяснено присутствием встроенного заряда в СЭ пленке [13].

Из графика, приведенного на рис. 4, следует, что плоско-параллельные структуры на основе пленок STO обеспечивают на СВЧ двукратное уменьшение уровня диэлектрических потерь по сравнению с аналогичными структурами на основе пленок BSTO. Низкий уровень

СВЧ-потерь подтверждает высокое структурное качество полученных пленок титаната стронция, т.е. практическое отсутствие зерен вторичных фаз и внутренних напряжений в пленке, и позволяет рассчитывать на создание конкурентоспособных СВЧ-приборов на основе пленок STO.

Одним из важнейших параметров работы СВЧ-устройства является его быстродействие. Для перестраиваемых конденсаторов на основе СЭ-пленок при их фундаментальном быстродействии до 10^{-11} s наблюдается замедление релаксации, связанное с образованием и перераспределением объемного заряда при подаче сильных электрических полей управления [13]. На рис. 5 для исследованных STO-конденсаторов представлен параметр быстродействия $\Delta C/C_0$, который отображает емкость конденсатора через 100 ms после снятия управляющего напряжения. Видно, что характеристика быстродействия имеет несимметричный характер (что рассмотрено в [14]), а достижение управляемости $K = 2$ при положительном напряжении сопровождается замедлением релаксации емкости на величину, не превышаю-

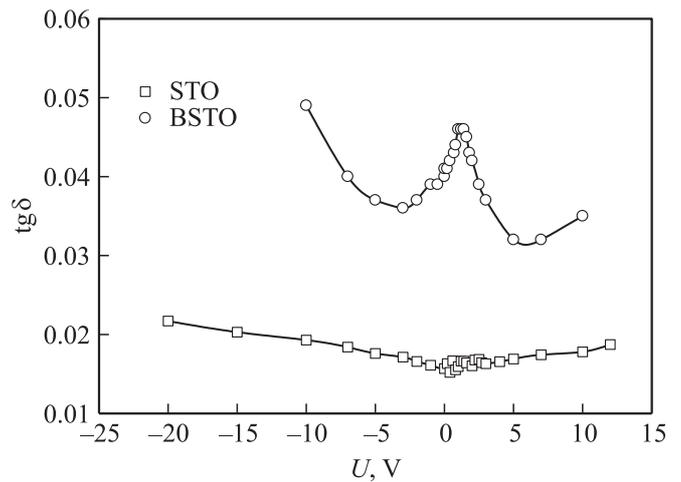


Рис. 4. СВЧ-потери STO- и BSTO-конденсаторов.

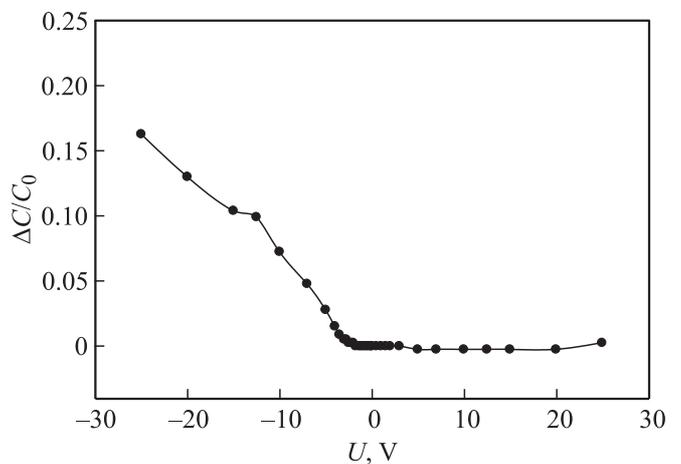


Рис. 5. Параметр быстродействия STO-конденсаторов.

щую 1%, что является перспективным результатом для применения в устройствах с быстрым переключением.

В результате проведенных исследований установлено, что температура осаждения пленок титаната стронция оказывает прямое влияние на такие структурные свойства пленок, как фазовый состав, ориентация кристаллической решетки пленки относительно подложки, внутренние напряжения в решетке. В данных технологических условиях наилучшими свойствами обладают пленки STO, полученные при температуре 800°C. Они имеют достаточно совершенную кристаллическую структуру, что оказывает положительное влияние на электрофизические свойства, в частности на уровень диэлектрических потерь и релаксационные характеристики. Сформированные на основе ориентированных пленок STO конденсаторные структуры показали управляемость $K = 2$ при управляющем напряжении 20 V, уровень СВЧ потерь, не превышающий 0.02 на частоте 1.5 GHz и медленную релаксацию емкости не выше 1%, что открывает новые возможности для использования титаната стронция в устройствах СВЧ-диапазона.

Список литературы

- [1] S.V. Razumov, A.V. Tumarkin, M.M. Gaidukov, A.G. Gagarin, A.B. Kozyrev, O.G. Vendik, A.V. Ivanov, O.U. Buslov, V.N. Keys L.C. Sengupta, X. Zhang. *Appl. Phys. Lett.* **81**, 9, 1675 (2002).
- [2] A. Ivanov, O. Soldatenkov, A. Tumarkin, A. Gagarin, A. Kozyrev. *Frequenz J. RF-Eng. Telecommun.* **1**, 27 (2005).
- [3] Т.Б. Самойлова, А.Б. Козырев, А.В. Тумаркин, А.М. Николаенко, А.Г. Гагарин. *ЖТФ* **75**, 10, 85 (2005).
- [4] O.Yu. Buslov, C.-Y. Kang, V.N. Keis, I.V. Kotelnikov, A.Yu. Shimko, M.F. Ivanova, A.V. Tumarkin, S.F. Karmanenko, A.B. Kozyrev. *Integrated Ferroelectrics* **86**, 1, 171 (2006).
- [5] A.B. Kozyrev, V.N. Osadchy, D.M. Kosmin, A.V. Tumarkin, T. Kaydanova, D. Ginley. *Appl. Phys. Lett.* **91**, 022 905 (2007).
- [6] М.М. Гайдуков, А.Г. Гагарин, А.Б. Козырев, С.В. Разумов, А.В. Тумаркин, А.Г. Алтынников. *Письма в ЖТФ* **34**, 13, 50 (2008).
- [7] А. Козырев, А. Иванов, О. Солдатенков, Е. Гольман, А. Прудан, В. Логинов. *Письма в ЖТФ*, **25**, 20, 45 (1999).
- [8] V.E. Loginov, A.V. Tumarkin, M.V. Sysa, O.U. Buslov, M.M. Gaidukov, A.I. Ivanov, A.B. Kozyrev. *Integrated Ferroelectrics* **39**, 375 (2001).
- [9] А.М. Прудан, Е.К. Гольман, А.Б. Козырев, А.А. Козлов, В.Л. Логинов. *Письма в ЖТФ* **24**, 9, 678 (1998).
- [10] А.М. Прудан, Е.К. Гольман, А.Б. Козырев, А.А. Козлов, В.Е. Логинов, А.В. Земцов. *ФТТ* **40**, 8, 1473 (1998).
- [11] А.Г. Алтынников, М.М. Гайдуков, А.Г. Гагарин, А.В. Тумаркин. *Изв. вузов. Радиоэлектроника* **3**, 67 (2008).
- [12] А.М. Прудан, Е.К. Гольман, А.Б. Козырев, Р.Н. Кютт, В.Е. Логинов. *ФТТ* **39**, 6, 1342 (1997).
- [13] А.Б. Козырев, М.М. Гайдуков, А.Г. Гагарин, А.Г. Алтынников, С.В. Разумов, А.В. Тумаркин. *Письма в ЖТФ* **35**, 13, 1 (2009).
- [14] A. Kozyrev, M. Gaidukov, F. Gagarin, A. Altynnikov, A. Tumarkin, N. Alford, P. Petrov. *J. Appl. Phys.* **106**, 014 108 (2009).