

06,13

## Кинетика роста индуцированных доменов в сегнетоэлектрических тонких пленках $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$

© Д.А. Киселев<sup>1,2</sup>, М.С. Афанасьев<sup>2</sup>, С.А. Левашов<sup>2</sup>, Г.В. Чучева<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Национальный исследовательский технологический университет „МИСиС“, Москва, Россия

<sup>2</sup> Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Фрязино, Россия

E-mail: dm.kiselev@gmail.com

(Поступила в Редакцию 15 декабря 2014 г.)

Показана возможность создания устойчивых доменных состояний в пленках  $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$  методом силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика как на исходной поверхности, так и в предварительно поляризованной области пленки. Проведен расчет скорости бокового движения доменной стенки, коэрцитивного поля, минимального размера домена и времени записи для создания домена приложенным напряжением.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (гранты № 12-07-00662-а, 13-07-00782-а) и Программы фундаментальных исследований Президиума РАН „Основы фундаментальных исследований нанотехнологий и наноматериалов“.

Исследования проводились на оборудовании Центра коллективного пользования „Материаловедение и металлургия“ при финансовой поддержке Минобрнауки РФ (уникальный идентификатор проекта RFMEFI59414X0007, соглашение № 14.594.21.0007).

Одним из перспективных направлений применения сегнетоэлектрических тонких пленок в микро- и наноэлектронике являются энергонезависимые элементы памяти, в которых обеспечивается эффект переключения поляризации.

Сегнетоэлектрическая пленка поляризуется внешним электрическим полем и сохраняет свою поляризацию после отключения электрического поля в течение длительного времени. Энергонезависимые элементы памяти на основе сегнетоэлектрических материалов характеризуются длительным временем хранения данных, большим числом циклов записи, низкими токами потребления и высокой надежностью хранения данных при воздействии внешних факторов.

Вопросам локального переключения поляризации в сегнетоэлектриках методами сканирующей зондовой микроскопии посвящено довольно много работ [1–3]. Однако для сегнетоэлектрических тонких пленок титаната бария-стронция подобные эксперименты ранее практически не проводились.

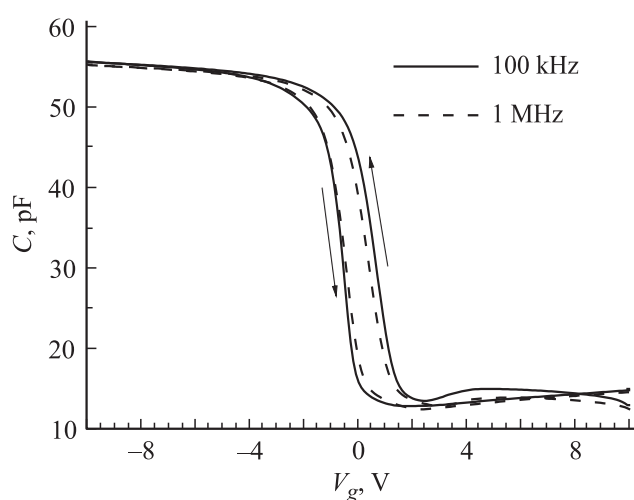
Целью настоящей работы являются исследования поляризационного состояния в тонкой сегнетоэлектрической пленке титаната бария-стронция как потенциальном объекте для создания на ее основе элемента энергонезависимой сегнетоэлектрической памяти.

Сегнетоэлектрические пленки состава  $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$  (BST) получены методом высокочастотного реактивного распыления керамической мишени в атмосфере кислорода на установке ПЛАЗМА-50 СЭ (Россия) по методике, представленной в работе [4]. В качестве подложек использован кремний *p*-типа марки КДБ 20 с кристаллографической ориентацией [100]. Толщина подложек  $200 \pm 2 \mu\text{m}$ .

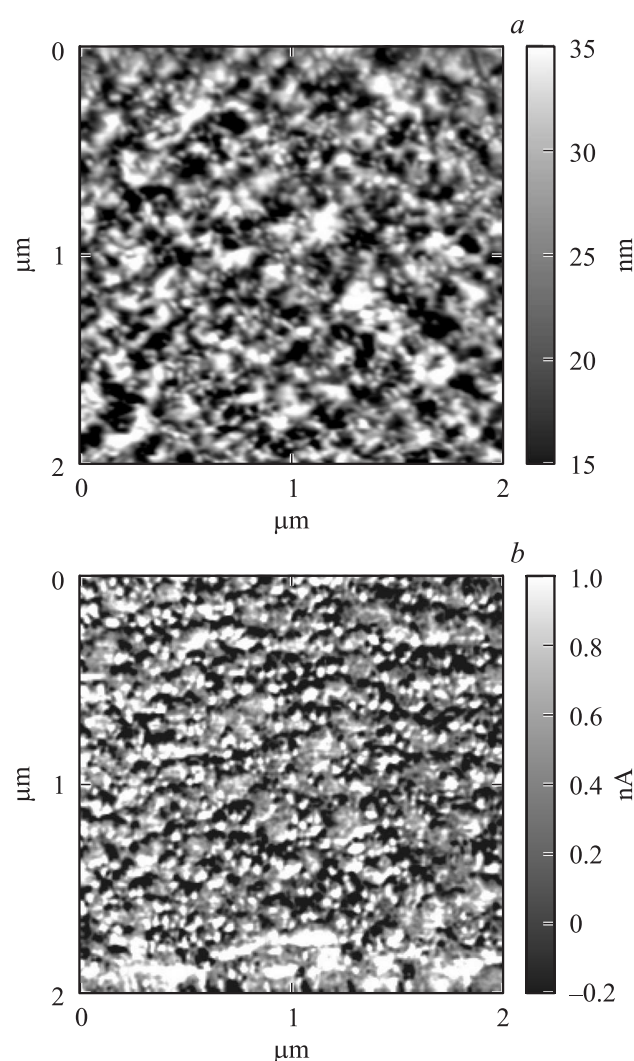
Для выращивания пленок  $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$  выбраны следующие технологические режимы: давление кислорода во время процесса напыления  $60 \pm 5 \text{ Pa}$ ; расстояние между мишенью и подложкой  $10 \pm 0.5 \text{ mm}$ ; мощность высокочастотного разряда  $230 \pm 5 \text{ W}$ ; температура подложки  $605 \pm 5^\circ\text{C}$ ; время осаждения 30 min. При таких условиях скорость роста пленки составляет 15.0–20.0 nm/min.

Визуализация поверхности и изображения доменной структуры тонких пленок BST исследованы методом силовой микроскопии пьезоотклика (СМПО) с помощью зондовой нанолaborатории Ntegra Prima (NT-MDT, Россия). Вертикальная компонента пьезоэлектрического отклика (сигнал Mag-Cos) получена в контактном режиме путем приложения к кантилеверу CSG10/Pt переменного напряжения амплитудой 5 V и частотой 180 kHz. Все измерения проводились при комнатной температуре.

Для исследования электрофизических свойств формировались структуры металл–диэлектрик–полупроводник (МДП-структуры) на основе пленки BST. Контакты изготавливались электронно-лучевым методом через теневую маску. В качестве материала омического контакта использовалось золото, обладающее наилучшей адгезией к пленке. Площадь контактов  $2.7 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2$ , толщина  $0.1 \mu\text{m}$ . Измерения вольт-фарадных характеристик проводились при комнатной температуре на автоматизированной экспериментальной установке [5] с использованием прецизионного измерителя LCR Agilent E4980A. Результаты измерений зависимостей емкости *C* гетероструктуры BST на частотах в диапазоне 100 kHz–1 MHz от напряжения полевого электрода  $V_g$  от  $-10$  до  $+10 \text{ V}$  представлены на рис. 1. По формуле плоского конденсатора получаем величину диэлектрической проницаемости, равной 115. Ширина гистерезиса составляет



**Рис. 1.** Зависимости емкости  $C$  МДП-структуры на основе BST от напряжения на полевом электроде  $V_g$  на частотах 100 кГц (сплошная линия), 1 МГц (штриховая линия).



**Рис. 2.** АСМ-изображение рельефа поверхности (а) и изображение доменной структуры (b) пленки BST.

около 2 В, это означает, что в данной структуре обеспечивается эффект переключения поляризации.

Структура пленки BST (рис. 2, а) характеризовалась средним размером зерен  $\sim 50\text{--}75$  нм. Шероховатость поверхности сегнетоэлектрического слоя составляла  $\sim 5$  нм. Изображение доменной структуры пленки показано на рис. 2, б. Пьезоэлектрический отклик с поверхности пленки принимал преимущественно положительные значения (см. вертикальную шкалу), это означает, что вектор поляризации в большинстве зерен по площади сканируемой поверхности ориентирован к нижнему интерфейсу [6,7].

Проведена серия экспериментов, посвященных исследованию скорости движения доменных стенок в тонких пленках BST. В данном эксперименте индуцированные сегнетоэлектрические домены создаются путем приложения импульсов постоянного напряжения к проводящему кантилеверу (кантилевер в данном случае играет роль верхнего электрода), а латеральный размер домена (радиус) измеряется как функция длительности импульса.

На рис. 3 показаны СМПО-изображения массива из 12 доменов, созданных путем приложения импульсов напряжения  $\pm 40$  В длительностью от 1 до 300 с (рис. 3, а). Чтобы исключить влияние границ зерен на латеральный рост создаваемого домена, выделенная область предварительно поляризовалась напряжением  $\pm 40$  В (рис. 3, б). В обоих случаях видно, что размер домена сильно зависит от длительности импульсов напряжения, прикладываемаемого между наконечником атомного силового микроскопа (АСМ) и нижним электродом. Размер доменов в плоскости монотонно увеличивается с увеличением времени записи  $\tau$ , которое составляет 1, 10, 60, 100, 200 и 300 с.

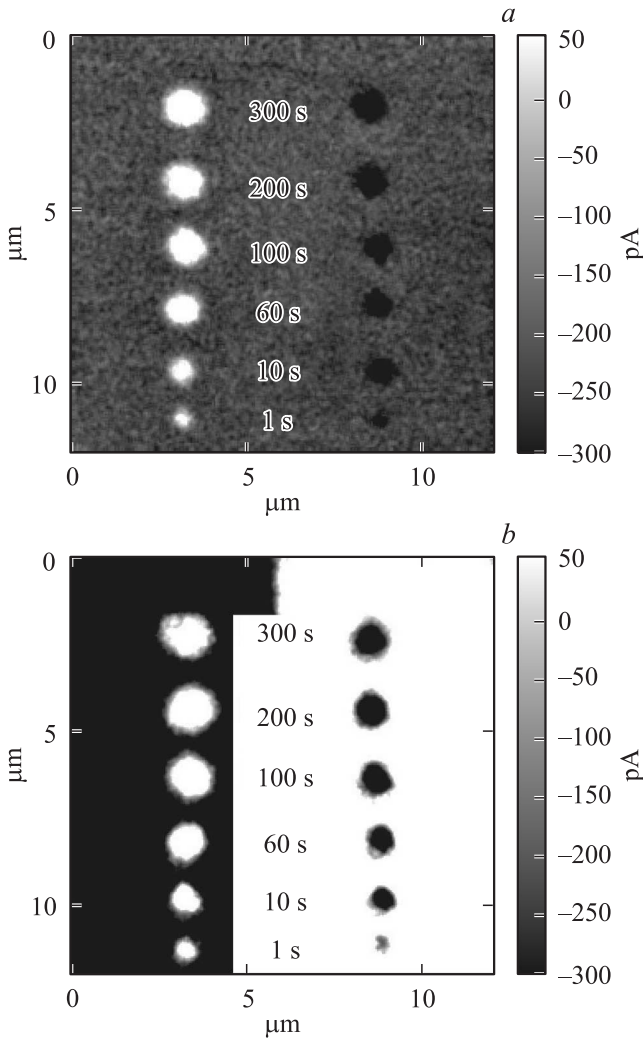
На рис. 4 показаны зависимости радиуса домена  $D$  от длительности импульса  $\tau$  при постоянном напряжении  $\pm 40$  В для двух вариантов записи индуцированных доменов: на исходной и предварительно поляризованной поверхности. Видно, что процесс роста домена быстро идет при малом времени записи  $\tau < 60$  с и сильно замедляется при  $\tau > 100$  с.

Также обращает на себя внимание разница в значениях радиуса индуцированных доменов в зависимости от знака поляризующего напряжения и от того, в какой области он создавался, причем последний факт наиболее ярко выражен только для отрицательных напряжений. Так, размер индуцированного домена, созданного при приложении импульса постоянного напряжения  $-40$  В длительностью 300 с, в предварительно поляризованной области в 1.5 раза больше размера домена, созданного на исходной поверхности пленки BST (рис. 4, б).

Экспериментально полученное симметричное переключение происходит из-за широкого распространения внутренней самополяризованной области между сегнетоэлектрической пленкой и нижним электродом (подложкой) при „выравнивании“ диполей. Это явление известно также как группы изгиба на границе пленка–

Данные расчета радиуса домена  $r_0$  и времени длительности импульса  $\tau$  в зависимости от предыстории образца

Параметр	Напряжение +40 V		Напряжение -40 V	
	Исходная поверхность	Предварительно поляризованная поверхность	Исходная поверхность	Предварительно поляризованная поверхность
$r_0, \text{nm}$	85	84	45	60
$\tau, \text{s}$	0.1	0.1	0.05	0.05



**Рис. 3.** Изображения остаточного пьезоотклика тонкой пленки BST после локальной поляризации на естественной поверхности (a) и после предварительной поляризации (b). Показаны сегнетоэлектрические  $180^\circ$  домены, образованные в пленке BST при напряжении +40 V (светлые точки) и -40 V (темные точки), приложенном между наконечником АСМ и нижним электродом.

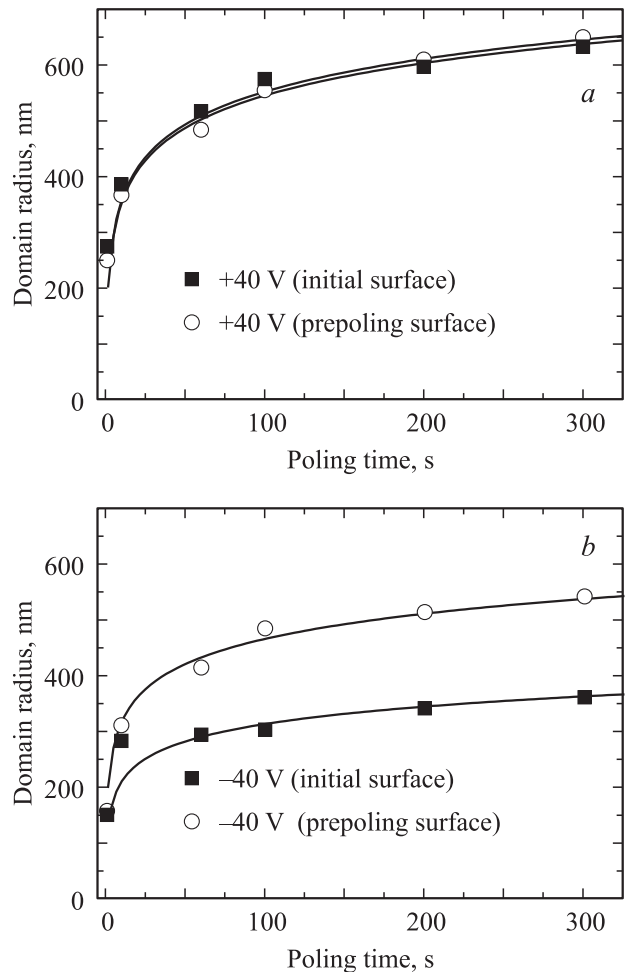
электрод [8]. Такой отрицательный пиннинг подразумевает, что, если абсолютная величина (амплитуда) напряжения смещения одинакова, при положительном напряжении достигается более легкое переключе-

ние/переполаризация доменов, чем при подаче отрицательного напряжения.

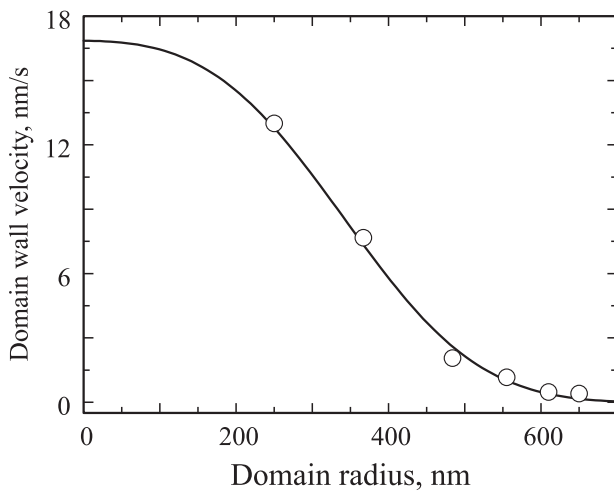
С помощью аппроксимации экспериментальных данных, представленных на рис. 4, функцией [9]

$$r(t) \approx r_0 \ln\left(\frac{t}{\tau}\right) + A \quad (1)$$

можно рассчитать минимальный размер (радиус  $r_0$ ) индуцированного домена и минимальное время длительно-



**Рис. 4.** Радиус домена как функция времени при приложении +40 V (a) и -40 V (b) к кантилеверу в исходной и предварительно поляризованной областях пленки BST. Линии — аппроксимация.



**Рис. 5.** Скорость движения доменных стенок как функция радиуса домена, вычисленная по данным, представленным на рис. 4, а.

сти импульса  $\tau$  для создания такого домена. Результаты математического расчета представлены в таблице.

Наблюдается разница как в размерах индуцированного домена, так и в длительности импульса напряжения для создания минимальной доменной области в зависимости от приложенного потенциала ( $+40$  V или  $-40$  V), причем для последнего требуется меньшее время для реполяризации.

Для более детального понимания механизма бокового роста доменов мы рассчитали мгновенную скорость движения доменных стенок исходя из временной зависимости радиуса домена для случая создания индуцированных доменов напряжением  $+40$  V в предварительно заполяризованной области (рис. 5).

Экспериментальные данные (точки на рис. 5) аппроксимировались функцией (сплошная линия на рис. 5)

$$v(r) = v_0 \exp\left(-\beta \left(\frac{r^2}{d^2} + 1\right)^{3/2}\right), \quad (2)$$

где  $d$  — эффективный радиус кантилевера,  $\beta = \gamma \frac{E_c d}{V}$  — безразмерная величина,  $\gamma$  — диэлектрическая анизотропия,  $V$  — напряжение [7]. С помощью этой аппроксимации можно определить значение коэрцитивного напряжения  $E_c$  и истинный радиус закругления кантилевера, используемого в эксперименте. Таким образом, мы получили значения  $E_c = 3$  kV/cm и  $d = 75$  nm. Для случая когда индуцированный домен создается импульсом напряжения амплитудой  $-40$  V, значение коэрцитивного поля составило  $E_c = 4$  kV/cm.

Таким образом, методами сканирующей зондовой микроскопии в режиме пьезоотклика показана возможность создания устойчивого индуцированного доменного состояния в пленках BST. Наблюдаемая разница в линейных размерах доменов, создаваемых при разных знаках электрического поля, ассоциируется с влиянием

интерфейсных эффектов на процесс распространения поляризации под кантилевером. Полученные результаты указывают на то, что сегнетоэлектрические тонкие пленки BST являются перспективными материалами для использования в качестве элементов памяти.

## Список литературы

- [1] S.V. Kalinin, A.N. Morozovska, L.Q. Chen, B.J. Rodriguez. Rep. Progr. Phys. **73**, 056 502 (2010).
- [2] L. Chen, J. Ouyang, C.S. Ganpule, V. Nagarajan, R. Ramesh, A.L. Roytburd. Appl. Phys. Lett. **84**, 254 (2004).
- [3] J.K. Lee, G.Y. Shin, K. Song, W.S. Choi, Y.A. Shin, S.Y. Park, J. Britson, Y. Cao, L.-Q. Chen, H.N. Lee, S.H. Oh. Acta Mater. **61** 18, 6765 (2013).
- [4] М.С. Афанасьев, М.С. Иванов. ФТТ **51**, 7, 1259 (2009).
- [5] Е.И. Гольдман, А.Г. Ждан, Г.В. Чучева. ПТЭ 2. 110 (1997).
- [6] S. Katayama, Y. Noguchi, M. Miyayama. Adv. Mater. **19**, 2552 (2007).
- [7] D.A. Kiselev, R.N. Zhukov, S.V. Ksenich, A.P. Kozlova, A.S. Bykov, M.D. Malinkovich, Yu.N. Parkhomenko. Thin Solid Films **556**, 142 (2014).
- [8] K.-W. Park, H. Seo, J. Kim, D. Seol, J. Hong, Y. Kim. Nanotechnology **25**, 355 703 (2014).
- [9] M. Molotskii, A. Agronin, P. Urenski, M. Shvebelman, G. Rosenman, Y. Rosenwaks. Phys. Rev. Lett. **90**, 107 601 (2003).