06 Термостабилизация свойств многослойных сегнетоэлектрических варикондов для сверхвысокочастотных применений

© М.М. Гайдуков, А.В. Тумаркин, А.Г. Гагарин, А.Б. Козырев

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет (ЛЭТИ) E-mail: avtumarkin@yandex.ru

Поступило в Редакцию 10 декабря 2013 г.

Исследованы температурные и сверхвысокочастотные свойства сегнетоэлектрических структур металл/диэлектрик/металл. Впервые продемонстрирована возможность достижения температурного коэффициента емкости порядка $10^{-4} \, \mathrm{K}^{-1}$ для сегнетоэлектрического вариконда на основе двух тонких слоев титана бария—стронция различного компонентного состава.

В настоящее время существует устойчивый интерес к сегнетоэлектрическим (СЭ) материалам, обусловленный возможностью создания на их основе электрически управляемых сверхвысокочастотных (СВЧ) устройств [1–3]. Наиболее перспективными сегнетоэлектрическими материалами для СВЧ-применений являются твердые растворы титанатов бария и стронция $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ (BSTO), электрофизические свойства которых изменяются в широких пределах [4]. Сегодня на базе тонких пленок BSTO реализованы лабораторные макеты управляемых СЭ-конденсаторов с высокой добротностью [5] и фазовращателей для частотного диапазона вплоть до 60 GHz [6–8].

Однако основным фактором, ограничивающим использование сегнетоэлектриков в технике СВЧ, является значительно более сильная зависимость свойств сегнетоэлектрического материала от температуры по сравнению с полупроводниками и ферритами. Таким образом, минимизация температурных зависимостей основных параметров емкостных СЭ-структур — температурного коэффициента емкости (ТКС), диэлектрических потерь и управляемости (отношения емкостей при

37

нулевом и максимальном приложенном управляющем напряжении $\kappa = C(0V)/C(U_{\text{max}}))$ — является актуальной задачей.

Существует ряд схемотехнических методов подавления температурной нестабильности СЭ-элементов, однако все они связаны либо с уменьшением управляемости [9], либо с усложнением конструкции устройства с СЭ-элементами [6].

Перспективным методом повышения температурной стабильности СЭ-пленок, не исключающим комбинацию с вышеперечисленными методами, является использование пленок Ba_xSr_{1-x}TiO₃ с переменным по толщине составом (изменение x). Такие пленки можно рассматривать как многослойную композицию с различными температурами фазового перехода каждого слоя. В настоящее время для реализации термостабильных сегнетоэлектрических конденсаторов разработаны методы определения концентрации бария и стронция в отдельных слоях и толщин соответствующих слоев [10,11]. Наилучшая температурная стабильность в диапазоне температур 20–140°С получена в работе [12] для плоскопараллельных (МДМ) конденсаторов на основе трех слоев с содержанием Ва 100, 50 и 0% (изменение диэлектрической проницаемости ε в этом температурном диапазоне не превышает 4%). В [13] показано, что свойства многослойной структуры зависят не только от состава слоев, но и от их положения в структуре. Результаты исследований трехслойных емкостных структур с толщиной слоев 220 nm и содержанием бария в слоях 90, 75, 60% приведены в [14], где продемонстрирована температурная стабильность емкости не хуже 5% в диапазоне температур -20-100°С. Следует отметить, что в данных работах приводятся экспериментальные данные для диэлектрических потерь в емкостных структурах $(\tan \delta)$ на частоте 100 kHz $(\tan \delta$ лежит в диапазоне 0.02-0.05 для разных образцов). Сравнительно высокий уровень потерь для данной частоты обусловлен наличием спонтанно поляризованных областей в слоях с содержанием бария более 60%, находящихся в сегнетоэлектрической фазе при комнатной температуре [5]. Эти данные не позволяют сделать вывод о применимости полученных пленок в СВЧ-диапазоне.

В связи с вышесказанным целью данной работы является исследование многослойных емкостных структур "металл/сегнетоэлектрик/металл" на основе пленок BSTO различного компонентного состава в СВЧ-диапазоне с целью уменьшения температурной зависимости их электрофизических свойств.

Для оценки стабилизации емкости в многослойных конденсаторах для каждого из слоев была использована математическая модель, суть которой состоит в аппроксимации экспериментальной зависимости емкости C от температуры T по закону Кюри–Вейса, с учетом плотности емкости переходного слоя между электродом и СЭ-пленкой C_s :

$$\frac{1}{C} = \begin{cases} 2\frac{T_C - T}{C_0} + \frac{1}{C_S}, & T < T_C, \\ \frac{T - T_C}{C_0} + \frac{1}{C_S}, & T > T_C, \end{cases}$$

где T_C — температура сегнетоэлектрического перехода (температура Кюри), C_0 — постоянная Кюри-Вейса. Переходный слой ("мертвый слой"), обусловленный несоответствием структурных параметров СЭпленки и электрода, физически может быть интерпретирован как слой, не обладающий сегнетоэлектрическими свойствами [15,16], а математически обеспечивает возможность определения величины расчетной емкости в точке перехода, а также размытие перехода в диапазоне температур.

Оценка плотности емкости переходного слоя была произведена путем экстраполяции к нулю зависимости C(d) для ряда пленок различной толщины d [16], что дало величину $C_S = (27 \pm 10) \, \mathrm{fF}/\mu \mathrm{m}^2$.

Температуры фазовых переходов СЭ-слоев с различным содержанием Ва можно рассматривать как границы диапазона, внутри которого возможна термостабилизация свойств многослойной емкостной структуры. Моделирование температурной зависимости емкости МДМ-конденсаторов на основе двухслойной СЭ-пленки с $T_{C1} = 210$ К (x = 0.5) и $T_{C2} = 400$ К (x = 0.9) с учетом плотности емкости переходных слоев показало, что в рассматриваемом диапазоне температур может быть обеспечен ТКС, не превышающий 10^{-4} К⁻¹, при условии, что толщины слоев связаны соотношением $d_1 = 2(C_{01}/C_{02})d_2$, где d_1 и d_2 — толщины слоев, а C_{01} и C_{02} — постоянные Кюри–Вейса слоев с температурами максимума T_{C1} и T_{C2} соответственно.

Исследуемые в работе пленки титаната бария—стронция были получены ВЧ магнетронным распылением керамических мишеней ВSTO различного компонентного состава (x = 0.3-0.9). Осаждение пленок проводилось на подложки сапфира (*r*-срез) с электродами Pt, сформированными методом ионного травления. Температура подложек составляла 675°C, что обеспечивало стехиометрический перенос состава

№ образца	Толщина пленки, nm	Содержание Ва в мишени, <i>х</i>	T _{max} , K	$\frac{\text{TKC} \cdot 10^4}{\text{K}^{-1}},$
1886	600	0.5	210	25
1979	600	0.9	400	25
1859	600	0.3	175	15
1952	400	0.5		1 2
Двухслойный	200	0.9		1-5

Значения ТКС конденсаторов на основе пленок, полученных из мишеней различного композиционного состава

мишени на подложку. В качестве рабочего газа использовался чистый кислород при давлении 2 Ра. Перед процессом осаждения проводилось предраспыление мишени в стороне от подложкодержателя в течение 30 min с целью очистки поверхности мишени. После осаждения каждого СЭ-слоя образцы охлаждались в кислороде при атмосферном давлении со скоростью $2-3^{\circ}$ С/min с целью формирования резкой границы между слоями. Толщина слоев составляла 200–600 nm. На поверхности СЭ-пленок формировались верхние электроды из меди толщиной $1\,\mu$ m с адгезионным подслоем хрома.

СВЧ-характеристики: управляемость κ и диэлектрические потери tan δ измерялись на частоте 1.5 GHz в диапазоне температур 250–400 К. Напряжение смещения, прикладываемое к конденсаторам U_b , менялось в диапазоне 0–50 V, что соответствовало напряженности поля в СЭпленке $E \cong 0-80$ V/ μ m. Температурная зависимость емкости образцов измерялась в диапазоне температур 90–400 К на частоте 1 МHz. Значения ТКС и параметры исследуемых емкостных структур приведены в таблице.

Экспериментальные температурные зависимости (нормированные к максимальной емкости) для двухслойного конденсатора (на основе слоя состава x = 0.5 толщиной 400 nm и слоя состава x = 0.9 толщиной 200 nm) и для однослойных конденсаторов (на основе пленок состава x = 0.5, x = 0.9 и x = 0.3 толщиной 600 nm) представлены на рис. 1 (для x = 0.9 нормировка проведена для максимальной емкости в диапазоне температур 120–400 K). Конденсатор на основе пленки состава x = 0.3 приведен для сравнения, как проявляющий оптимальные свойства для СВЧ-применений [5]. Из приведенных результатов видно, что применение двухслойной пленки 0.5/0.9 существенно уменьшает



Рис. 1. Температурные зависимости конденсаторов (1 MHz): I — двухслойный; 2, 3, 4 — однослойный, x = 0.5, 0.9, 0.3 соответственно.

температурную зависимость емкости и позволяет уменьшить ТКС сегнетоэлектрических варикондов до величин $(1-3) \cdot 10^{-4} \, \mathrm{K}^{-1}$.

С точки зрения практического использования СЭ управляемых структур на СВЧ чрезвычайно важным является также постоянство управляемости конденсатора в заданном интервале температур. На рис. 2 приведены зависимости емкости и tan δ от температуры для однослойных и двухслойных конденсаторов при отсутствии и при подаче управляющего напряжения, измеренные на частоте 1.5 GHz. Отметим, что для двухслойных конденсаторов управляемость практически одинакова во всем диапазоне температур 290–400 К ($\kappa = 2$), тогда как для однослойных конденсаторов наблюдается весьма значительное изменение как емкости, так и управляемости (κ уменьшается от 2.2 при 290 К до 1.9 при 400 К). Относительно высокие диэлектрические потери двухслойного МДМ-конденсатора по сравнению с однослойным можно объяснить большой концентрацией бария в слое состава x = 0.9 и потерями в переходных слоях.



Рис. 2. Емкость и СВЧ-потери МДМ-конденсаторов на основе исследованных сегнетоэлектрических пленок (1.5 GHz). Однослойная пленка (x = 0.3) при напряжениях: 1 - 0, 2 - 5, 3 - 20 V; двухслойная пленка при напряжениях: 4 - 0, 5 - 20, 6 - 50 V.

Таким образом, применение в управляемых СЭ-конденсаторах двух слоев титаната бария-стронция с различным содержанием Ва позволяет уменьшить температурный коэффициент емкости до величин

 $(1-3) \cdot 10^{-4} \, \mathrm{K}^{-1}$, что сопоставимо с величиной температурного коэффициента емкости полупроводниковых варакторов. Ранее подобные данные по температурной стабильности свойств сегнетоэлектрических варикондов не публиковались. Решение проблемы температурной зависимости свойств сегнетоэлектриков позволяет рассчитывать на создание новых перспективных СВЧ-устройств.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ, в рамках научного проекта № 13-02-12096 офи_м и Минобрнауки РФ.

Список литературы

- Cole M.W., Weiss C.V., Ngo E., Hirsch S., Coryell L.A., Alpay S.P. // Appl. Phys. Lett. 2008. V. 92. P. 182 906.
- [2] Lihui Yang, Freddy Ponche, Genshui Wang, Denis Remiens, Jean-Fancois Legier, Daniel Chateigner, Xianlin Dong // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 97. P. 162 909.
- [3] Вендик О.Г. // ФТТ. 2009. Т. 51. В. 7. С. 1441–1445.
- [4] Tagantsev A.K., Sherman V.O., Astafiev K.F., Venkatesh J., Setter N. // J. Electroceramics. 2003. V. 11. P. 5–66.
- [5] Тумаркин А.В., Тепина Е.Р., Ненашева Е.А., Картенко Н.Ф., Козырев А.Б. // ЖТФ. 2012. Т. 82. В. 6. С. 53–57.
- [6] Буслов О.Ю., Кейс В.Н., Козырев А.Б., Котельников И.В., Кулик П.В. // ЖТФ. 2005. Т. 75. В. 9. С. 89–94.
- [7] Козырев А.Б., Иванов А.В., Солдатенков О.И., Разумов С.В., Тумаркин А.В., Айгунова С.Ю. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. В. 24. С. 16.
- [8] Козырев А.Б., Гайдуков М.М., Гагарин А.Г., Тумаркин А.В., Разумов С.В. // Письма в ЖТФ. 2002. Т. 28. В. 6. С. 51–56.
- [9] Прудан А.М., Козырев А.Б., Земцов А.В. // ЖТФ. 2004. Т. 74. В. 3. С. 87–90.
- [10] Vendik O.G., Zubko S.P., Karmanenko S.F. et al. // J. Appl. Phys. 2002. V. 91. N 1. P. 331–335.
- [11] Vendik O.G., Zubko S.P., Nikol'ski M.A. // J. Appl. Phys. 2002. V. 92. N 12. P. 7448–7452.
- [12] Sigman J., Clem P.G., Nordquist C.D. // Appl. Phys. Lett. 2006. V. 89. P. 132 909.
- [13] Sigman J., Clem P.G., Nordquist C.D. et al. // J. Appl. Phys. 2007. V. 102. P. 054 106.
- [14] Zhong S., Alpay S.P., Cole M.W., Ngo E., Hirsch S., Demaree J.D. // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 90. P. 092 901.
- [15] Pálová L., Chandra P., Rabe K.M. // Phys. Rev. 2007. V. 76. P. 014112.
- [16] Pertsev N.A., Dittmann R., Plonka R., Waser R. // J. Appl. Phys. 2007. V. 101. P. 074 102.