

06,13

Реакция диэлектрических параметров пленок (110)SrTiO₃ на формирование в их объеме сегнетоэлектрических доменов

© Ю.А. Бойков, В.А. Данилов

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

E-mail: yu.boikov@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 8 апреля 2019 г.

В окончательной редакции 8 апреля 2019 г.

Принята к публикации 9 апреля 2019 г.

Трехслойные гетероструктуры SrRuO₃/SrTiO₃/SrRuO₃ выращены методом лазерного испарения на подложках (110)LaAlO₃. Фотолитография и ионное травление использованы при формировании плоскопараллельных пленочных конденсаторов, в которых слой титаната стронция помещен между двух пленочных электродов из рутената стронция. Получены данные о структуре и ориентации промежуточного слоя SrTiO₃ в выращенных гетероструктурах. Исследовано изменение диэлектрической проницаемости и диэлектрических потерь промежуточного слоя SrTiO₃ при варьировании температуры и напряженности внешнего электрического поля.

Ключевые слова: диэлектрическая проницаемость, диэлектрические потери.

DOI: 10.21883/FTT.2019.08.47973.450

1. Введение

При низких температурах ($T < 77$ К) для кристаллов титаната стронция характерны существенная диэлектрическая нелинейность и малая величина диэлектрических потерь ($\tan \delta$), что обуславливает перспективность их использования в перенастраиваемых элементах СВЧ техники (фазовращатели, линии задержки, и т.д. [1,2]). Для практического применения особый интерес представляют высокосовершенные по структуре пленки SrTiO₃ (STO), интегрированные с проводящими прослойками (электродами) в эпитаксиальных гетероструктурах. Роль электродов в гетероструктурах могут успешно выполнять тонкие слои изоморфных по структуре с STO высоко проводящих оксидов (рутенаты, манганиты [3,4]). В качестве ориентирующих подложек могут быть использованы монокристаллические пластины перовскитоподобных оксидов (алюминат лантана, галлат неодима и т.д.), обладающих низкими значениями тангенса угла диэлектрических потерь при указанных выше температурах и достаточно хорошо согласующиеся с STO по параметрам кристаллических решеток. Подложки (100)LaAlO₃ были успешно использованы при формировании перенастраиваемых СВЧ элементов, включающих эпитаксиальную комбинацию YBa₂Cu₃O_{7- δ} /Ba_{0.05}Sr_{0.95}TiO₃ [5]). От ориентации подложки зависят: а) ориентация слоев в гетероструктуре, б) зарядовое состояние межфазных границ, в) глубина проникновения электрического поля в оксидный электрод, г) интенсивность диффузионного обмена в области межфазных границ, д) уровень механических напряжений в слоях, интегрированных в гетероструктуре. Механические напряжения могут оказывать существенное

влияние на диэлектрические параметры пленок STO, в частности индуцировать появление сегнетоэлектрических доменов в их объеме [2].

2. Эксперимент

Метод лазерного испарения (ComPex 200, KrF, $\lambda = 248$ nm, $\tau = 30$ ns) был использован для выращивания на подложках (110)LaAlO₃ трехслойных гетероструктур SRO/STO/SRO. Температура подложки при формировании гетероструктуры равнялась 780°C, давление кислорода (P_{O_2}) в ростовой камере поддерживалось на уровне 0.2 mbar. Плотность лазерного излучения на поверхности испаряемых керамических мишеней STO и SRO равнялась 1.7 J/cm². Пленки STO имели толщину $d = 600$ nm, а толщина электродов SRO составляла 200 nm. Данные о структуре промежуточного слоя STO и электродов SRO были получены с использованием рентгеновской дифракции (Philips X'pert MRD, CuK α_1 , $\omega/2\theta$ и φ — сканы). Фотолитография и ионное травление (Ar⁺, 600 V) были использованы при формировании верхних электродов ($S = 80 \times 80 \mu\text{m}^2$) плоскопараллельных, пленочных конденсаторов и „окон“ для обеспечения контакта с нижним, общим для всех (9 штук), сформированных на подложке алюмината лантана, пленочных конденсаторов. Емкость (C) и $\tan \delta$ сформированных конденсаторов измерялись с использованием Agilent hp 4263B LCR meter ($f = 10\text{--}100$ kHz) при подаче на электроды напряжения смещения (V_b) и без него. V_b считалось положительным, когда + был подан на верхний электрод. При $T = 300$ К разброс в величине емкости сформированных на чипе конденсаторов не превышал 15%. Диэлектрическая проница-

емость (ϵ промежуточного слоя STO рассчитывалась с использованием соотношения $\epsilon = Cd/S\epsilon_0$, где ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума.

3. Результаты и их обсуждение

Рентгеновский скан, визуализированный для гетероструктуры SRO/STO/SRO, выращенной на подложке (110)LaAlO₃, показан на рис. 1. На дифрактограмме четко разрешаются пики (*nm0*) от подложки и от промежуточного слоя STO. Последние частично перекрывались с относительно слабыми рентгеновскими пиками от нижнего и верхнего электродов SRO. Это стало причиной искажения рентгеновских пиков титаната стронция со стороны малых значений 2θ , см. вставку (b) на рис. 1.

Расогласование в параметрах элементарных ячеек рутената стронция ($a_{SRO} = 3.923 \text{ \AA}$ [3]) и титаната стронция ($a_{STO} = 3.905 \text{ \AA}$ [6]) индуцировало появление в промежуточном слое STO растягивающих в плоскости подложки, механических напряжений. Частичной релаксации напряжений в слое титаната способствовало появление малоугловых межкристаллитных границ в слоях, интегрированных в гетероструктуре. Кристаллические зерна с эффективным латеральным размером порядка 250 nm четко разрешались на изображении свободной поверхности гетероструктуры, полученном с использованием микроскопа атомных сил, см. вставку (a)

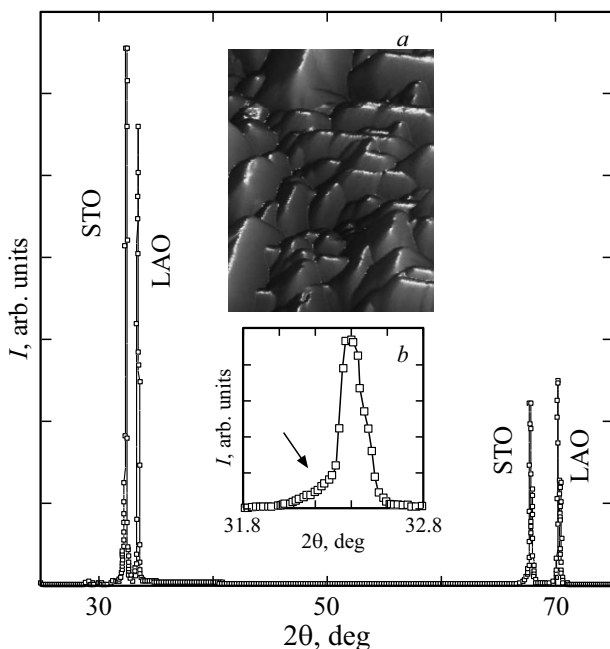


Рис. 1. Рентгеновский скан ($\omega 2\theta$, $\text{CuK}\alpha_1$), визуализированный для гетероструктуры SRO/STO/SRO, выращенной на подложке (110)LAO, приведен на рис. 1. Изображение свободной поверхности сформированной гетероструктуры показано на вставке (a). На вставке (b) показан рентгеновский пик (110)STO в увеличенном масштабе, стрелкой отмечено его искажение из-за перекрытия с пиками от электродов SRO.

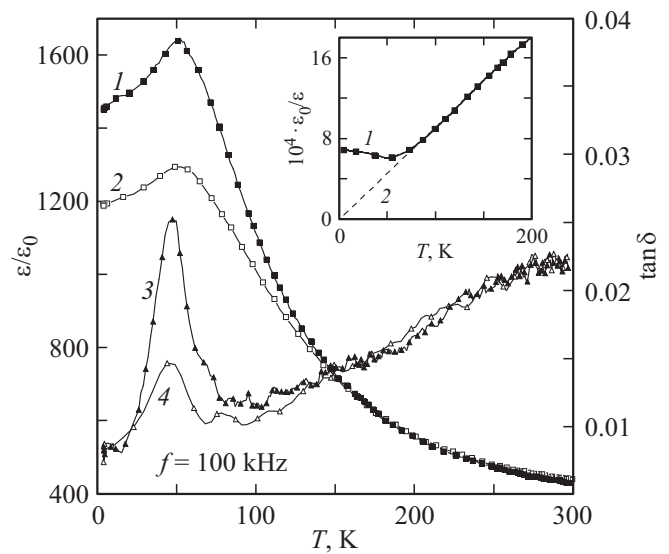


Рис. 2. Температурные зависимости диэлектрической проницаемости (1, 2) и диэлектрических потерь (3, 4) промежуточного слоя STO в емкостной гетероструктуре SRO/STO/STO. 1 и 3 — $V_b = 0$, 2 и 4 — $V_b = 2.5 \text{ V}$. На вставке показана температурная зависимость ϵ/ϵ_0 , визуализированная при $V_b = 0$, пунктиром показана касательная к кривой в интервале температуры 70–200 K.

на рис. 1. Латеральная разориентация кристаллических зерен в слое STO не превышала 0.4 градуса. Эта оценка получена с использованием ϕ — скана, визуализированного для рефлекса (111)STO от выращенной гетероструктуры SRO/STO/SRO.

Температурные зависимости ϵ/ϵ_0 и $\tan \delta$ для промежуточного слоя STO в сформированном пленочном конденсаторе, измеренные при напряжении смещения $V_b = +2.5 \text{ V}$ и без него, приведены на рис. 2. Диэлектрические потери в слое STO уменьшались примерно линейно при понижении температуры в интервале 300 – 90 K, что обусловлено уменьшением проводимости слоя титаната стронция. С понижением частоты измерительного сигнала до 10 kHz потери в указанном интервале температуры увеличивались примерно на 20–25%. При дальнейшем понижении температуры потери в слое титаната стронция резко (в 2–3 раза) возрастали. Максимальные значения $\tan \delta$ для промежуточного слоя STO наблюдались при $T_C \approx 50 \text{ K}$. Вероятной причиной появления резкого пика на температурной зависимости $\tan \delta$ vs T является формирование в механически напряженном слое STO сегнетоэлектрических доменов. Вибрация доменных стенок в электрическом поле существенно влияет как на величину измеряемых диэлектрических потерь, так и на величину диэлектрической проницаемости.

Внешнее электрическое поле оказывало существенное влияние на ориентацию и эффективный размер сегнетоэлектрических доменов в промежуточном слое STO. При $T = T_C$ подача напряжения смещения +2.5 V на

электроды SRO сопровождалась уменьшением диэлектрических потерь в слое STO примерно в двое.

Диэлектрическая проницаемость промежуточного слоя STO возрастала с понижением температуры в интервале 300–50 К, что обусловлено уменьшением ангармонизма решеточных колебаний и увеличением вклада доменных стенок в $\varepsilon/\varepsilon_0$. При $T \approx 50$ К и $V_b = 0$ В на температурной зависимости $\varepsilon/\varepsilon_0$ наблюдался четкий максимум, который становился менее ярко выраженным при подаче на электроды напряжения смещения +2.5 В. Следует отметить, что максимум на зависимости $\varepsilon/\varepsilon_0$ vs T , визуализированной для слоя STO в гетероструктуре SRO/STO/SRO, выращенной на подложке (110)LAO, наблюдался при температуре примерно на 25 К выше, чем максимум на соответствующей зависимости, полученной [7] для слоя титаната стронция, когда подложка (110)LAO была заменена на подложку (100)LSATO, которая обеспечивает низкий уровень механических напряжений в промежуточном слое STO.

В интервале температуры 70–200 К обратная величина диэлектрической проницаемости слоя STO возрастала практически линейно с повышением температуры см. вставку на рис. 2. Касательная к кривой $\varepsilon/\varepsilon_0$ vs T показана пунктиром на вставке, данные по ее наклону были использованы для получения оценки постоянной Кюри ($C_0 \approx 0.6 \cdot 10^5$ К) для промежуточного слоя STO в гетероструктуре SRO/STO/SRO. Полученное значение для C_0 хорошо согласуется с соответствующим параметром для объемных кристаллов STO.

При $T > 150$ К внешнее электрическое поле практически не оказывало влияния на диэлектрическую проницаемость промежуточного слоя STO и на $\tan \delta$, см. рис. 2. Это свидетельствует о не значительном влиянии включений сегнетоэлектрической фазы на диэлектрические параметры выращенных слоев STO при указанных выше температурах.

4. Заключение

Метод лазерного испарения использован для формирования на подложках (110)LAO трехслойных эпитаксиальных гетероструктур, в которых слой STO толщиной в 600 nm интегрирован с оксидными электродами. Механические напряжения, индуцированные разницей в параметрах кристаллических решеток титаната и рутената стронция, способствовали появлению при температуре порядка 50К сегнетоэлектрических доменов в промежуточном слое в слое STO.

Финансирование работы

Финансовая поддержка данных исследований была получена из Президиума РАН.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] О.Г. Вендик. ФТТ **51**, 1441 (2009).
- [2] Y.L. Li, S. Choudhury, J.H. Haeni, M.D. Biegalski, A. Vasudevarao, A.Y.L. Li, S. Choudhury, J.H. Haeni, M.D. Biegalski, A. Vasudevarao, A. Sharan, H.Z. Ma, J. Levy, Sharan, H.Z. Ma, J. Levy, Venkatraman Gopalan, S. Trolier-McKinstry, D.G. Schlom, Q.X. Jia, L.Q. Chen. Phys. Rev. B **73**, 184112 (2006).
- [3] P.A. Cox, R.G. Egdell, J.B. Goodenough, A. Hamnett, C.C. Naish. J. Phys. C **16**, 6221 (1983).
- [4] G. Jeffrey Snyder, Ron Hiskes, Steve DiCarolis, M.R. Beasle, T.H. Geballe. Phys. Rev. B **53**, 14434 (1996).
- [5] R.A. Chakalov, Z.G. Ivanov, Yu.A. Boikov, P. Larsson, E. Carlsson, S. Gevorgian, T. Claeson. Physica C **308**, 279 (1988).
- [6] R.W.G. Wyckoff. In: Crystal Structures. 2nd ed. Interscience, N. Y.(1964). V. 2, 394 p.
- [7] Ю.А. Бойков, В.А. Данилов. ФТТ **3**, 594 (2019).

Редактор Т.Н. Василевская