

06,13

Влияние материала верхнего электрода на электрофизические свойства МДМ-структур на основе сегнетоэлектрических пленок

© М.С. Афанасьев, Д.А. Белорусов, Д.А. Киселев, Г.В. Чучева[¶]

Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН,
Фрязино, Московск. обл., Россия

[¶] E-mail: gvc@ms.ire.rssi.ru

Поступила в Редакцию 28 апреля 2023 г.

В окончательной редакции 28 апреля 2023 г.

Принята к публикации 4 мая 2023 г.

Сегнетоэлектрические пленки состава $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$ (BST) синтезированы на платинированные кремниевые подложки методом ВЧ-распыления. На выращенные пленки методом электронно-лучевого распыления сформированы верхние электроды из никеля, алюминия, меди и хрома. Представлены результаты исследований электрофизических свойств полученных гетероструктур металл–диэлектрик–металл (МДМ) (Me-BST-Pt-Si).

Ключевые слова: сегнетоэлектрические пленки BST, структуры металл–диэлектрик–металл (МДМ), микроструктура, электрофизические свойства.

DOI: 10.21883/FTT.2023.06.55666.73

1. Введение

Интеграция сегнетоэлектрических материалов с технологиями и материалами современного микроэлектронного производства открывает возможность создания нового поколения запоминающих устройств и устройств хранения информации, основанных на нелинейных физических эффектах [1–3].

Одним из таких перспективных сегнетоэлектрических материалов является слоистый перовскит состава барий–стронций–титан ($Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$). Выбор данного состава для применения его в качестве активного слоя в МДМ-структуре обусловлен высоким значением диэлектрической проницаемости вблизи комнатной температуры [4].

Цель настоящей работы — исследование влияния материала верхнего электрода на электрофизические свойства МДМ-структур на основе сегнетоэлектрических пленок состава $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$.

2. Образцы и методика эксперимента

В качестве подложек использовали платинированные пластины кремния с адгезионным подслоем титана. Сегнетоэлектрические пленки состава $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$ (BST) формировались методом ВЧ-распыления. Для осаждения BST-пленок использовали керамическую мишень аналогичного состава диаметром 50 мм. Вакуумную камеру установки откачивали до давления 10^{-3} Па. Распыление мишени осуществляли в атмосфере кислорода при давлении 10 Па, напряжении разряда $U = 450$ В, токе разряда $I = 0.65$ А и скорости напыления 6 nm/s. После напыления все образцы имели зеркальную поверхность.

Верхние электроды на BST-пленки напыляли через теньевую маску методом электронно-лучевого оса-

ждения при остаточном давлении в рабочей камере 10^{-5} Па, температуре 70°C и скорости напыления 2.0 \AA/s . Толщина электродов составляла $100 \pm 5 \text{ nm}$, площадь $2.7 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2$. Материал электрода: никель (Ni), алюминий (Al), медь (Cu), хром (Cr).

Толщина BST-пленок определялась методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) на микроскопе NovaNanoSem 230 фирмы FEI.

Структура полученных BST-пленок исследовалась методом рентгеноструктурного анализа на автоматизированном двухкристальном дифрактометре ДРОН-3, работающем по схеме Брегга–Брентано. Были использованы кварцевый монохроматор и излучение $CuK\alpha_1$ с длиной волны 0.15405 nm.

Морфология поверхности BST-пленок, процессы переключения поляризации исследованы на сканирующем зондовом микроскопе MFP-3D Stand Alone (Oxford Instruments Asylum Research, США). Остаточные петли пьезоэлектрического гистерезиса получены в режиме DART-PFM вблизи контактного резонанса системы „кантилевер–поверхность пленки“, который составлял $\sim 0.9 \text{ MHz}$, после чего были скорректированы с помощью модели простого гармонического осциллятора [5,6]. При получении петель гистерезиса использовались кантилеверы Asytec-02 (Oxford Instruments Asylum Research, США). Переменное напряжение составляло 2 В. Постоянное напряжение варьировалось в диапазоне от -15 V до $+15 \text{ V}$ с шагом 0.75 В. Время подачи импульса постоянного напряжения и время регистрации сигнала пьезоэлектрического отклика после снятия напряжения составляли 12.5 ms.

Вольт-фарадные (ВФХ), частотные и температурные зависимости МДМ-структур на основе BST-пленок измерялись на автоматизированной экспериментальной установке [7] с использованием прецизионного измерителя LCR (Agilent) и пикоамперметра фирмы Keithley.

3. Результаты и обсуждение

3.1. Структурные исследования структур с пленкой BST

На рис. 1 приведена дифрактограмма BST-пленки.

На дифрактограмме выделяются пики от разных плоскостей BST-пленки, что говорит об отсутствии в ней преимущественной ориентации. Угловое положение пиков свидетельствует о стехиометрическом составе пленки и отсутствии макронапряжений. Слабая интенсивность и значительная ширина пиков позволяет сделать вывод о малом размере кристаллитов.

На рис. 2 приведено СЭМ-изображение скола МДМ-структуры, полученное под углом 75° .

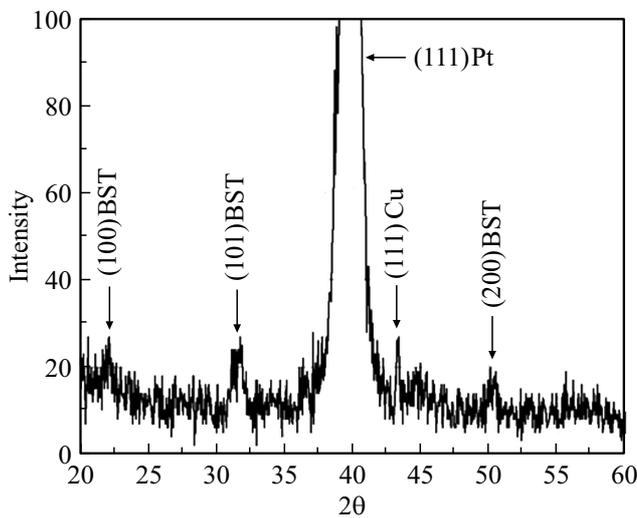


Рис. 1. Рентгеновская дифрактограмма BST-пленки.

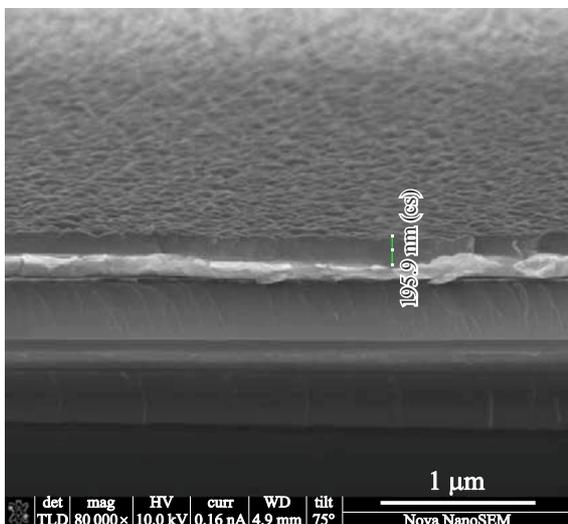


Рис. 2. СЭМ-изображение скола МДМ-структуры.

СЭМ-изображение МДМ-структуры показало, что толщина платинированного слоя 130 nm, толщина BST-пленки 200 ± 10 nm.

3.2. Исследования BST-пленки методами сканирующей зондовой микроскопии

На рис. 3, *a* представлено изображение поверхности BST-пленки, среднеквадратичная шероховатость (Rms) которой составила 5.1 nm. Как видно из представленного скана, BST-пленка морфологически равномерная, посторонние загрязнения и включения на поверхности пленки отсутствуют. Средний размер зерен рассчитывался с помощью автокорреляционной функции [8] в программе обработки СЗМ изображений WSxM [9]. На рис. 3, *b* показана аппроксимированная зависимость корреляционной функции для определения среднего размера зерен в исследуемой пленке. 2D-изображение автокорреляционной функции, полученное из скана поверхности, представлено на вставке к рис. 3, *b*. Расчеты показали, что для BST-пленки, синтезированной на платинированную кремниевую подложку, средний размер зерен составил 53 nm.

Пьезоэлектрические свойства тонкой BST-пленки исследовались в режиме силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика. На рис. 3, *c* представлен сигнал индуцированного пьезоотклика для BST-пленки после поляризации постоянным напряжением ± 8 V. Макродоменные области создавались путем сканирования поверхности пленки постоянным напряжением, подаваемым на проводящий кантилевер, который играл роль верхнего электрода. Таким образом, потенциалом создавались две заполяризованные области площадью $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ („светлая область“ — поляризация при +8 V) и $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ („темная область“ — поляризация при -8 V).

В режиме спектроскопии переключения поляризации получена остаточная петля пьезоэлектрического гистерезиса (рис. 3, *d*), подтверждающая переключение поляризации в наномасштабной области (в пределах площади контакта кантилевера с поверхностью пленки). Петля гистерезиса асимметричная и характеризуется малыми напряжениями переключения: $V_{C+} = 3.9$ V и $V_{C-} = -2.4$ V. Такую разницу в значениях напряжений мы ассоциируем с наличием внутреннего поля смещения, вызванным кислородными вакансиями и пространственным зарядом.

3.3. Электрофизические свойства МДМ-структур

На рис. 4 приведены ВФХ МДМ-структур с различными верхними электродами, измеренные при комнатной температуре на частоте 1.0 MHz.

Зависимость емкости МДМ-структур от напряжения смещения имеют колоколообразную форму со сдвигом в положительную область относительно 0 V и петлю,

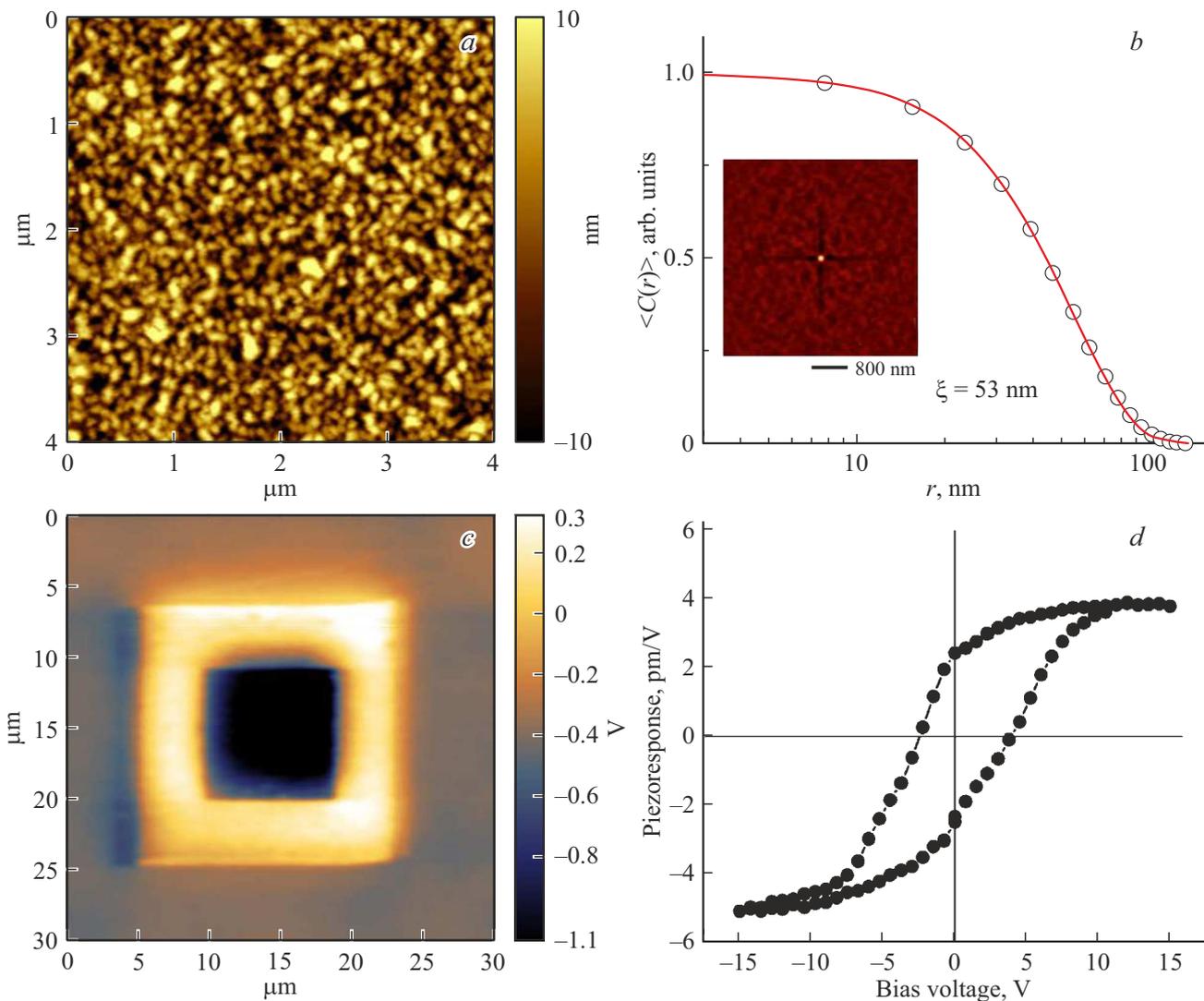


Рис. 3. Изображение поверхности BST-пленки (а), график радиально усредненных значений среднего размера зерен (b) (на вставке 2D-представление автокорреляционной функции), изображение индуцированной поляризации: светлый квадрат поляризация при +8 V, темный квадрат при -8 V (с), остаточная петля пьезоэлектрического гистерезиса (d).

образованную прямым и обратным ходом напряжения смещения. Сдвиг максимума относительно 0 V может быть обусловлен присутствием в BST-пленке внутреннего электрического поля, появление которого связано с различиями в структуре и зарядовом состоянии нижней и верхней межфазных границ Me/BST/Pt. В зависимости от материала верхнего электрода сдвиг максимальной емкости (C_{\max}) составлял для Ni, Cu, Cr, Al — 1 V, 0.9 V, 1.1 V, 1.4 V, коэффициент управляемости МДМ-структур 2.97, 2.52, 2.33, 2.44 соответственно.

На рис. 5 представлены частотные зависимости емкости (C) и тангенса угла диэлектрических потерь ($\tan \delta$) МДМ-структур, измеренные при комнатной температуре. Измерения проведены при напряжениях, соответствующих C_{\max} ВФХ МДП-структур.

Для МДП-структур с верхними электродами Ni, Cu, Cr характерно увеличение емкости в диапазоне частот

от 10 kHz до 2.0 MHz. Наибольшее увеличение емкости наблюдается у МДМ-структуры с Ni от 1250 pF до 1600 pF. Для МДП-структуры с Al значение емкости не изменяется.

Тангенса угла диэлектрических потерь ($\tan \delta$) практически линейно и идентично возрастал у всех МДМ-структур. Наиболее сильное увеличение $\tan \delta$ наблюдалось у МДМ-структуры с Ni с 0.05 при 10 kHz до 0.27 при 2 MHz.

На рис. 6 представлены температурные зависимости C_{\max} МДМ-структур. Измерения проведены в интервале температур от 20°C до 120°C на частоте 1 MHz.

У МДП-структуры с Ni наблюдается падение C_{\max} со значения 1230 pF при 20°C до величины 1100 pF при 120°C, для остальных МДП-структур Cr, Al и Cu значение C_{\max} практически не изменяется.

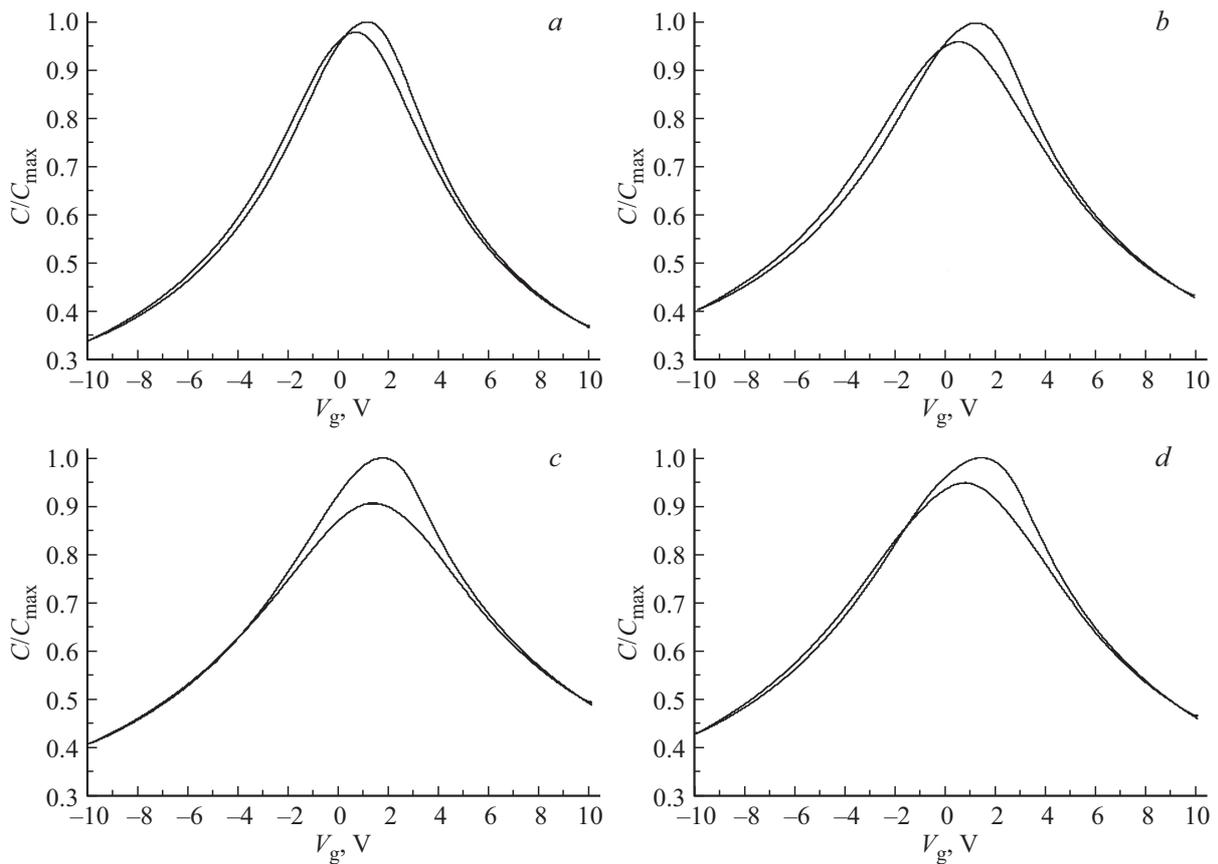


Рис. 4. ВФХ МДМ-структур, измеренные при комнатной температуре на частоте 1.0 МГц, с различными верхними электродами: *a* — Ni, *b* — Cu, *c* — Al, *d* — Cr.

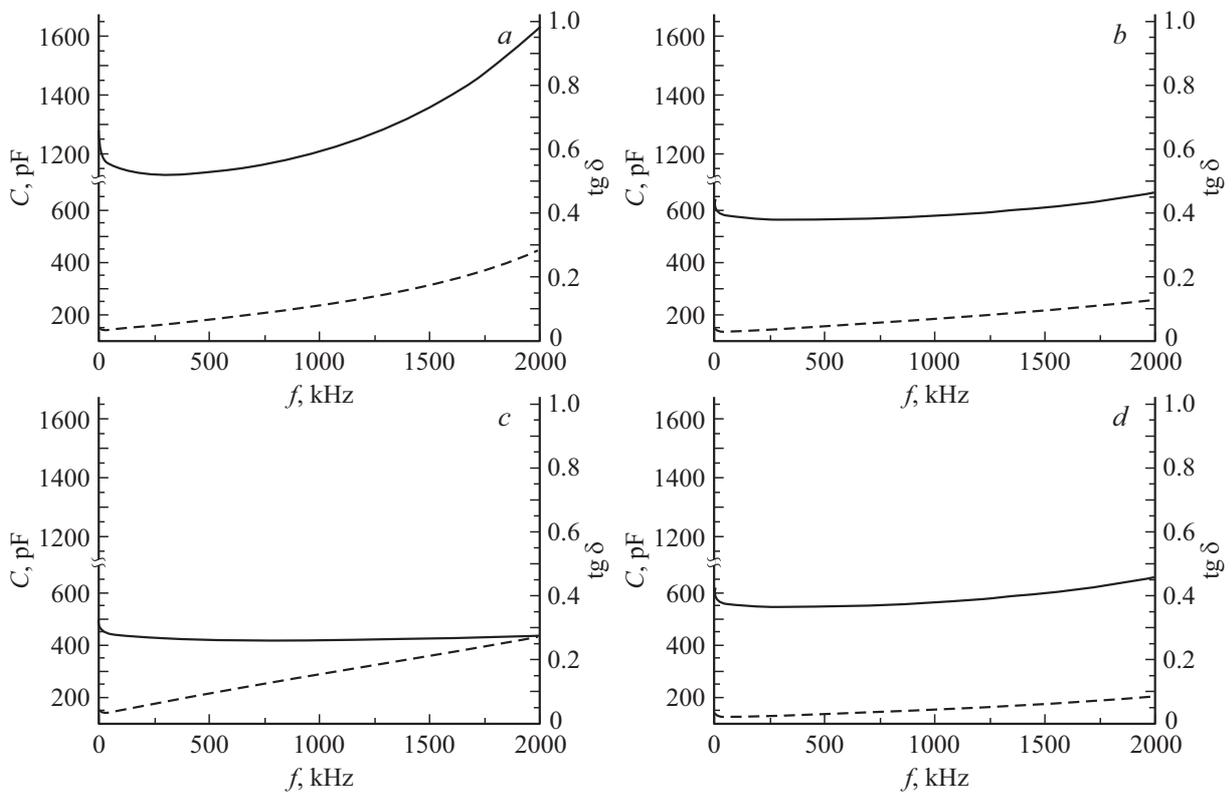


Рис. 5. Зависимость емкости (сплошная линия) и тангенса угла диэлектрических потерь (штриховая линия) МДП-структур от частоты: *a* — Ni, *b* — Cr, *c* — Al, *d* — Cu.

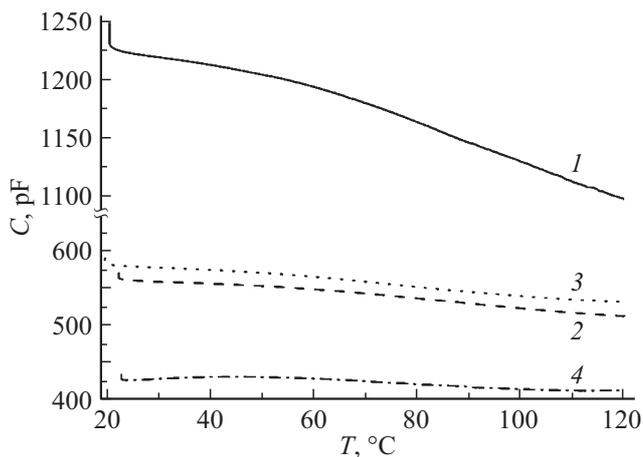


Рис. 6. Зависимость максимальной емкости МДП-структур от температуры в зависимости от материала верхнего электрода: 1 — Ni, 2 — Cu, 3 — Cr, 4 — Al.

4. Заключение

Рентгеноструктурные измерения свидетельствуют о стехиометрическом составе BST-пленки. По данным сканирующей зондовой микроскопии средний размер кристаллитов составил 53 nm. На основе наличия индуцированного поляризованного состояния и остаточной петли пьезоэлектрического гистерезиса показана возможность локальной переполаризации. Кроме того, результаты силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика исследуемых пленок выявили асимметрию сигнала остаточной поляризации, что связано с наличием внутреннего поля в пленке BST.

Проведенные исследования показали, что МДМ-структуры на основе BST-пленок имеют несущественные различия электрофизических характеристик в зависимости от материала верхнего электрода. Проведенные температурные исследования показали, что МДМ-структуры с верхними электродами Cr, Al и Cu достаточно термостабильны в диапазоне температур от 20 до 120°C и не меняют значения своей емкости более чем на 10%.

Проведенные исследования показывают, что наиболее подходящими материалами для создания электродов в МДМ-структурах на основе BST-пленок являются Cr, Al и Cu.

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-19-00493, <https://rscf.ru/project/22-19-00493/>.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Д.А. Абдуллаев, Р.А. Милованов, Р.Л. Волков, Н.И. Боргардт, А.Н. Ланцев, К.А. Воротилов, А.С. Сигов. *Russ. Technol. J.* **8**, 5, 44 (2020).
- [2] К.А. Воротилов, В.М. Мухортов, А.С. Сигов. *Интегрированные сегнетоэлектрические устройства*. Энергоатомиздат, М. (2011). 175 с.
- [3] К.М. Рабе, Ч. Г. Ан, Ж.-М. Трискон. *Физика сегнетоэлектриков: современный взгляд*. Лаборатория знаний, Город (2020). 443 с.
- [4] В. М. Мухортов, Ю. И. Юзюк. *Гетероструктуры на основе наноразмерных сегнетоэлектрических пленок: получение, свойства и применение*. ЮНЦ РАН, Ростов н/ Д. (2008). 221 с.
- [5] A. Gannepalli, D.G. Yablon, A.H. Tsou, R. Proksch. *Nanotechnology* **24**, 159501 (2013).
- [6] J. Bian, P. Xue, R. Zhu, L. Wang, B. Yang, T. Li, Q. Hu, L. Shen, J. Wang, G. Lu, Y. Yang. *Appl. Mater. Today* **21**, 100789 (2020).
- [7] Е.И. Гольдман, А.Г. Ждан, Г.В. Чучева. *ПТЭ* **6**, 110 (1997).
- [8] М.С. Афанасьев, Д.А. Киселев, С.А. Левашов, А.А. Сивов, Г.В. Чучева. *ФТТ* **61**, 10, 1948 (2019).
- [9] R.C. Munoz, G. Vidal, M. Mulsow, J.G. Lisoni, C. Arenas, A. Concha, R. Esparza. *Phys. Rev. B* **62**, 7, 4686 (2000).

Редактор Т.Н. Василевская