

## ПОЛУЧЕНИЕ ПЛЕНОК SrTiO<sub>3</sub> МЕТОДОМ МАГНЕТРОННОГО ИОННОГО РАСПЫЛЕНИЯ ИЗ ЖИДКОЙ ФАЗЫ

**А.А.АГАСИЕВ, М.М.ПАНАХОВ, Ч.Г.АХУНДОВ, М.З.МАМЕДОВ,  
В.Дж.МАМЕДОВА**

*Бакинский Государственный Университет  
AZ 1148, Баку, ул. З.Халилова, 23*

Магнетронным распылением получены пленки титаната стронция стехиометрического состава. Определена минимальная температура, выше которой величины диэлектрической проницаемости пленки и монокристалла совпадают. Исследована диэлектрическая нелинейность в широком интервале напряженностей поля.

### ВВЕДЕНИЕ

Сегнетоэлектрические пленки находят разнообразные технические применения в электронных, оптоэлектронных, акустических устройствах. Микроминиатюрность, высокая чувствительность, быстроедействие, малые управляющие поля и потребляемая энергия стимулируют создание приборов, содержащих тонкослойный элемент, причем в ряде случаев необходимый эффект достигается только при использовании пленки.

Для реализации научных и прикладных прогнозов важно знать особенности физико-химического состояния тонкого слоя вещества сложного состава. В отличие от магнитных, полупроводниковых и других сегнетоэлектрические пленки всегда многокомпонентны, например, пленки сложных окислов состоят из трех и более элементов. Это усложняет механизмы структурообразования, усугубляет фазовую и структурную неравновесность, выдвигает на первый план проблемы стехиометрии и упорядочения.

подавляющее большинство сегнетоэлектрических пленок представляют собой тонкие слои сложных металлических окислов. Среди многочисленных классов сегнетоэлектрических веществ сложные окислы металлов выгодно отличаются от остальных разнообразием, технологичностью, широтой использования в технике. Входящие в этот класс сегнетоэлектрики типа титаната стронция (со структурой перовскита) имеют особенно простое строение [1], позволяющее на его основе проследить связь структуры со свойствами.

нами рассмотрена возможность получения пленок SrTiO<sub>3</sub> стехиометрического состава методом магнетронной системы ионного распыления из жидкой фазы. Исследована диэлектрическая проницаемость пленок в широком интервале напряженности поля.

### ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

В настоящее время для получения тонких пленок все более широко используется метод ионного распыления материала [2-4]. Основные достоинства этого метода следующие:

-возможность получения пленок почти всех материалов, используемых в микроэлектронике: металлов (включая тугоплавкие), сплавов (в том числе многокомпонентного состава), полупроводников и полупроводниковых соединений, диэлектриков;

-возможность получения различных соединений (нитридов, окислов и т.д.) при введении в плазму реакционноспособных газов (реактивное распыление);

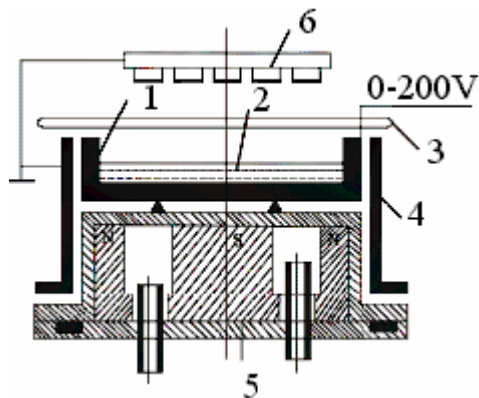
- сохранение состава распыляемых многокомпонентных сплавов при осаждении пленки;
- высокая адгезия получаемых пленок к подложкам;
- получение однородных по толщине покрытий на рельефных подложках;
- возможность очистки поверхности подложек с помощью ионной бомбардировки перед осаждением пленки;
- возможность изменения строения и электрофизических параметров пленки с помощью ионной бомбардировки в процессе осаждения;
- высокий коэффициент использования распыляемого материала.

В основном используются две методики ионного распыления: ионно-плазменная и ионно-лучевая. При ионно-плазменном распылении газоразрядная плазма создается непосредственно у распыляемой поверхности, и образующиеся в плазме ионы бомбардируют мишень, находящуюся под высоким отрицательным потенциалом. При ионно-лучевом распылении плазма образуется в ионном источнике, из которого с помощью системы ускоряющих и фокусирующих электродов вытягивается пучок высокоэнергетических ионов, направляемый на мишень из распыляемого материала, помещенную в высоковакуумную камеру. Наибольшее применение для нанесения пленок благодаря своей простоте получил метод ионно-плазменного распыления. Магнетронные системы ионного распыления материалов (МСИР) получили свое название от СВЧ приборов М-типа (магнетронных устройств), хотя они, кроме наличия скрещенных электрического и магнитного полей, ничего общего с СВЧ –приборами не имеют. В МСИР атомы распыляемого материала удаляются с поверхности мишени при ее бомбардировке ионами рабочего газа (обычно аргона), образующимися в плазме аномального тлеющего разряда. Для увеличения скорости распыления необходимо увеличить интенсивность ионной бомбардировки мишени, т.е. увеличить плотность ионного тока на поверхность мишени ( $j_i$ ). Наиболее радикальным методом увеличения  $j_i$  является использование магнитного поля, силовые линии которого параллельны распыляемой поверхности и перпендикулярны силовым линиям электрического поля [5].

При подаче постоянного напряжения между мишенью (отрицательный потенциал) и анодом (положительный или нулевой потенциал) возникает неоднородное электрическое поле и возбуждается аномальный тлеющий разряд. Эмиттированные с катода под действием ионной бомбардировки электроны захватываются магнитным полем и оказываются как бы в ловушке, создаваемой, с одной стороны, магнитным полем, возвращающим электроны на катод, а, с другой стороны, поверхностью мишени, отталкивающей электроны. Электроны находятся в этой ловушке до тех пор, пока не произойдет несколько ионизирующих столкновений с атомами рабочего газа, в результате которых электрон теряет энергию, полученную от электрического поля. Прежде чем электрон попадет на анод большая доля его энергии используется на ионизацию и возбуждение газа, что значительно увеличивает эффективность процесса ионизации и приводит к возрастанию концентрации положительных ионов у поверхности мишени. Это, в свою очередь, приводит к увеличению интенсивности ионной бомбардировки мишени и соответственно значительному увеличению скорости распыления.

По теоретическим расчетам, подтвержденными экспериментальными исследованиями, процесс ионного распыления происходит в при поверхностном слое толщиной  $0,3 \div 0,6$  нм и на него в распылительной системе затрачивается менее 3% подводимой энергии. Остальная энергия переходит, в основном, в тепло, вследствие чего приходится интенсивнее охлаждать мишень. Для материала в

твердом состоянии максимально допустимая скорость распыления ограничивается его теплопроводностью. Коэффициент теплопроводности у многих чистых материалов скачкообразно изменяет свою величину вблизи точки плавления, и в расплавленном состоянии к мишени можно подводить большие мощности, тем самым увеличивая скорость распыления. Более того, при повышении температуры расплава начинается процесс испарения. Таким образом, энергию, которая при



распылении из твердой фазы теряется в виде тепла, можно использовать на дополнительную генерацию вещества его испарением, объединив процессы ионного распыления и термического испарения в единый распылительно-испарительный процесс.

Схема реализации метода распыления из жидкой фазы представлена на Рис1.

**Рис.1.**

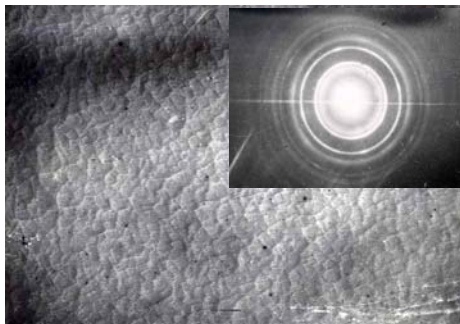
Схема устройства для распыления из жидкой фазы: 1- тигель; 2-расплавленная мишень; 3-анод; 4-экран; 5- магнитная система; 6-подложкадержатель.

Для осуществления этого процесса между плоским тиглем (1), изготовленным из тугоплавкого материала, и водоохлаждаемой магнитной системой (5) делали небольшой (2,5мм) зазор, препятствующий отводу тепла от тигля в процессе распыления мишени (2), помещенной в тигель. Рабочий объем откачивали до  $\sim 3 \cdot 10^{-6}$  мм рт.ст, затем напускали аргон, между тиглем и анодом прикладывали напряжение, постепенно увеличивая плотность тока на мишени до такой величины, при которой начинается интенсивное расплавление находящегося в тигле материала. При определенной плотности тока начинается интенсивное испарение материала из расплава, причем при достижении высокой упругости паров распыляемого материала начинается процесс самораспыления. При этом можно прекратить напуск аргона, что существенно снижает загрязнение пленки остаточными газами. Помимо высокой эффективности использования энергии распылительно –испарительная система позволяет достичь высоких скоростей осаждения, причем тенденция к фракционированию при распылении сплавов выражена значительно слабее, чем при обычном термическом испарении. В качестве мишени использовали диск диаметром 35мм и толщиной 2мм, изготовленный прессованием порошка  $\text{SrTiO}_3$  стехиометрического состава.

Пленки были нанесены на пластинки  $\text{NaCl}$  для электронографических исследований, а также на пластинки (12,0×10,0×0,5)мм стекла, ситалла, поверхности которых содержали совокупность платиновых и серебряных планарных электродов. Распыление проводилось при давлении  $\sim 5 \cdot 10^{-1}$  мм рт.ст, температура подложки варировались в интервале  $400^{\circ}\text{C} \div 600^{\circ}\text{C}$ , толщина пленок составляла 0,6мкм-2,8мкм.

**Рис.2.**

Микроструктура и электронограмма пленки  $\text{SrTiO}_3$  нанесенной на подложку  $\text{NaCl}$  при  $500^{\circ}\text{C}$ .



Рентгеноструктурные исследования показали, что пленки имеют кристаллическую решетку типа перовскита с преимущественной ориентацией [100] относительно поверхности подложки. В направлении [100] размер элементарной ячейки увеличен ( $a=0,3941\text{нм}$ ) по сравнению с данными для монокристалла ( $a_0=0,3902\text{нм}$ ) [6]. Микроструктура и электронограмма пленки  $\text{SrTiO}_3$ , нанесенной

на NaCl при 500<sup>0</sup>С представлена на (Рис.2). Пленки обладают поликристаллической структурой и мелкозернистостью.

Четырехзондовым методом на частоте 1МГц проведены исследования температурного поведения емкости С(Т) планарных конденсаторов, имеющих многослойную структуру SrTiO<sub>3</sub>/Au (электроды конденсатора)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Зазор между электродами в конденсаторе был равен 4мкм. Измерены зависимости емкости от температуры С(0,Т) и при приложении к электродам конденсатора управляющих напряжений U<sub>i</sub>, при которых в области Т>80К на зависимости С(U<sub>i</sub>,Т) обнаруживается максимум. При температурах 80К и 300К в интервале напряжений (0-200В) определены вольт-фарадные характеристики. Найдены следующие относительные изменения полной емкости С(У, Т):

$$C(0, 80K)/C(0, 300K) \approx 1,6; C(10V, 80K)/C(180V, 80K) \approx 2,4;$$

$$C(0, 300K)/C(180V, 300K) \approx 1,2$$

Межэлектродное пространство конденсатора планарной конструкции имеет неоднородное диэлектрическое заполнение (воздух, подложка, пленка), дает основание полагать, что пленка SrTiO<sub>3</sub> также представляет неоднородную по диэлектрической проницаемости среду. Это может быть связано как с наличием воздушных включений (раковин), так и с проявлением граничных условий для вектора поляризации на поверхности кристаллитов [7].

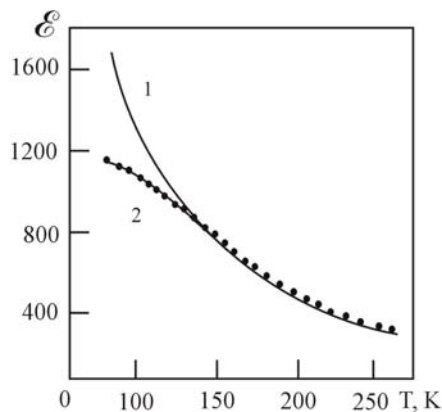


Рис.3.

Температурная зависимость диэлектрической проницаемости монокристаллического (1) и пленочного (2) титаната стронция при нулевом (E=0) смешивающем поле.

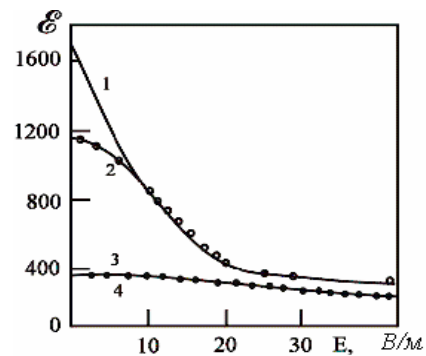


Рис.4.

Зависимость диэлектрической проницаемости монокристаллического (1,3) и пленочного (2,4) титаната стронция от напряженности внешнего электрического поля при T=80К (1, 2) и T=300К (3,4).

В диапазоне 180К<Т<300К материал пленки и кристалла SrTiO<sub>3</sub> неразличны по величине диэлектрической проницаемости и ее температурному поведению, однако отклонение от закона Кюри наблюдается (Рис.3) при более высокой (Т~180К), чем у кристалла (Т~100К), температуре.

Конструкция конденсатора позволила исследовать диэлектрическую нелинейность SrTiO<sub>3</sub> в широком (до E~10<sup>7</sup>В/м) диапазоне напряженностей электрического поля (Рис.4). Показано, что диэлектрическая проницаемость существенно меняется под действием поля даже при комнатной температуре. Подобный результат получен при воздействии поля, ориентированного по нормали к пленке [7].

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

По абсолютным значениям и температурной зависимости диэлектрической проницаемости пленочный титанат стронция с кристаллической решеткой типа перовскита на подложке из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в области Т>180К неотличим от свободного

кристалла SrTiO<sub>3</sub>. Несоответствие в области T<180К, вероятно, связано с проявлением механического воздействия на пленку со стороны подложки из-за рассогласованности температурных коэффициентов линейного расширения [8].

1. А.А.Агасиев, *докторская диссертация, Баку*, (1995) 379.
2. Ю.А. Байков, И.П. Пронин, Э.Г. Иванов, *ФТТ*, **38** В.4 (1996)133.
3. F.A.Miranda, C.H. Mueller, G.A. Koepp, *Supercond. Sci. Techno.*, **8** (1995) 755.
4. S.Komatsu, K. Abe Japan, *J.Appl. Phys.*, 34 (1995) 3597.
5. E.Kay, *J.Appl. Phys.*, **34** №4 (1979) 864.
6. Thomas H, R.A. Muller, *Phys. Rev. B. Sol. State*, **1** (1970) 3599.
7. О.Г.Вендик, С.П.Зубко, Тер-Мартиросян, *ФТТ*, **38** (1996) 3654.
8. А.М.Прудан, Е.К.Гольдман, А.Б.Козырев, Р.Н. Кютт, В.Е. Логинов, *ФТТ*, **39** (1997) 1024.

**MAQNETRON İON TOZLANMA ÜSULU İLƏ MAYE HALINDAN SrTiO<sub>3</sub>  
TƏBƏQƏLƏRİNİN ALINMASI**

**A.A.AĞASIYEV, M.M.PƏNAHOV, Ç.Q.AXUNDOV, M.Z.MƏMMƏDOV, V.C.MƏMMƏDOVA**

Maqnetron tozlanması ilə stexiometrik tərkibli SrTiO<sub>3</sub> təbəqələri alınmışdır. Nazik təbəqənin və monokristalın dielektrik nüfuzluqlarının üst-üstə düşməyə başladığı minimal temperatur təyin edilmişdir. Elektrik sahəsinin geniş intervalında dielektrik qeyri-xəttiliyi tədqiq olunmuşdur.

**OBTAINING OF SrTiO<sub>3</sub>FILMS BY THE METHOD OF MAGNETRON SPUTTERING  
FROM LIQUID PHASE**

**A.A.AQASIEV, M.M.PANAKHOV, Ch.G.AHUNDOV, M.Z.MAMEDOV, V.J.MAMEDOVA.**

SrTiO<sub>3</sub> films of stoichiometric composition have been obtained by the method of magnetron sputtering. The minimal temperature has been determined above which dielectric constant of film and monocrystal were coincided. The dielectric nonlinearity on the wide interval of field intensities has been investigated.

Редактор: Э.Гусейнов