

*Тумаркин А.В., Гагарин А.Г., Сапего Е.Н.,
Грешишникова Ю.С., Феоктистова Д.А.
Санкт-Петербургский государственный электротехнический
университет «ЛЭТИ»*

Зависимость структурных свойств ультратонких пленок титаната бария в системе $\text{BaTiO}_3/\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{MnO}_3$ /сапфир от качества подслоя манганита лантана-стронция

Представлены результаты исследования тонких слоев титанат бария и манганита лантана-стронция в системе $\text{BaTiO}_3/\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{MnO}_3$ /сапфир. Проведен анализ влияния температуры осаждения подслоя манганита лантана-стронция на структурные свойства титаната бария. Нанометровые слои титаната бария были получены методом ионно-плазменного распыления для применения в области сегнетоэлектрических элементов памяти на основе туннельных эффектов.

Ключевые слова: высокочастотное магнетронное распыление, титанат бария, манганит лантана-стронция, сегнетоэлектрический туннельный переход (СТП).

Соединение свойств сегнетоэлектриков с явлением квантово-механического туннелирования позволяет создать условия для простого, быстрого и, главное, неразрушающего считывания информации, через воздействие поляризации сегнетоэлектрика на туннельный ток в наноразмерных структурах проводник-сегнетоэлектрик-проводник, или сегнетоэлектрических туннельных переходах (СТП).

Использование для создания (СТП) в качестве проводящих слоёв материалов со структурой перовскита считается наиболее эффективным способом обеспечить сегнетоэлектрическую поляризацию в сверхтонких плёнках по сравнению с металлическими проводниками [1] и является общепринятым в настоящее время подходом. В качестве таких слоёв используются SrRuO_3 [2], $n\text{-SrTiO}_3$ [3], сложные структуры $\text{SrRuO}_3\text{-SrTiO}_3$ [4]. Одним из наиболее перспективных материалов, применяемых в качестве нижнего электрода СТП структур, является манганит лантана-стронция $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{MnO}_3$ (LSMO) [5].

Тонкие пленки LSMO были получены радиочастотным магнетронным распылением керамической мишени состава $\text{La}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{MnO}_3$. Распыление проводилось в кислородной атмосфере при давлении 2 Па на подложки чистого сапфира (r-срез). Температура подложки составляла 700-880°C. Осаждение титаната бария (ВТО) проводилось при температуре подложки 800°C в атмосфере чистого кислорода. Фазовый анализ сформированных пленок проводился с помощью рентгеновского дифрактометра ДРОН-7, микроструктура, морфология поверхности, микроскопия пьезотклика и локальная поверхностная ВАХ системы ВТО/LSMO/сапфир исследовались с помощью атомно-силового микроскопа «Смена».

В ходе исследования были определены оптимальные температурные режимы осаждения слоев манганита лантана-стронция LSMO на сапфир. Пленки, осажденные при температуре 800°C имеют поликристаллическую структуру с параметром решетки 0,381 нм, в то время как повышение температуры до 880°C приводит к возникновению

преимущественно ориентированной структуры (h00) с параметром решетки 0.385 нм, что соответствует компонентному составу распыляемой мишени $\text{La}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{MnO}_3$ (см. рис. 1).

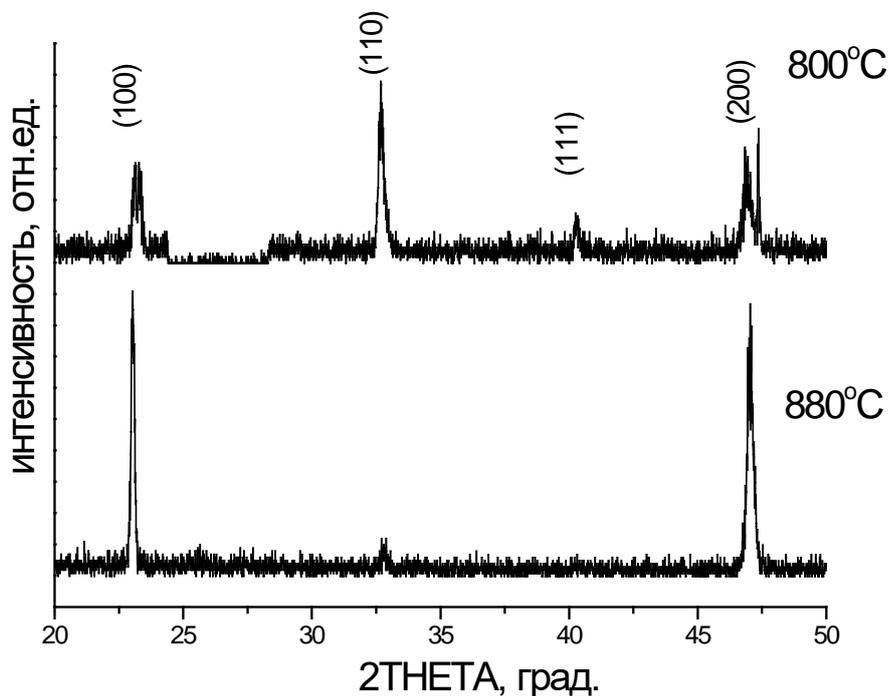


Рис.1. Дифрактограммы пленок LSMO на сапфире, осажденных при 800°C и 880°C.

Для определения структурного качества титаната бария в системе ВТО/LSMO/сапфир в зависимости от качества проводящего подслоя манганита образцы исследовались в режиме малоуглового рентгеновского рассеяния (МУРР). Рентгенограммы МУРР измерялись с вращением в диапазоне углов рассеяния рентгеновских лучей от 0.1° до 2° , где падающий и отражённый рентгеновские лучи локализованы в плёнке ВТО (см. рис.2).

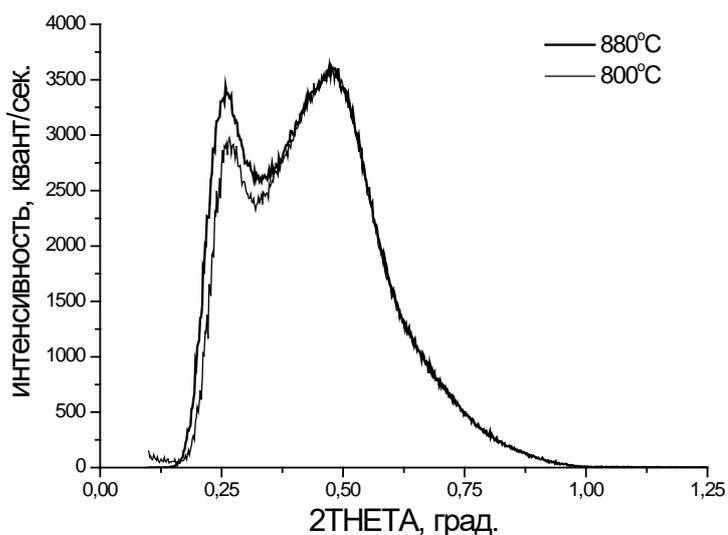


Рис. 2. Рентгенограммы МУРР от плёнки BaTiO_3 в системе ВТО/LSMO/сапфир при различных температурах осаждения подслоя LSMO.

Все рентгенограммы МУРР от плёнки ВТО характеризуются двумя ярко выраженными максимумами. Согласно данным МУРР наибольшие интенсивности дифракционных пиков, определяющие наибольшую контрастность дифракционной картины, наблюдаются для образца с наиболее высокотемпературным подслоем. В этом случае более совершенная кристаллическая структура слоя LSMO приводит к увеличению интенсивности при меньшем угле 2θ пика почти на 20% по сравнению с образцом, полученном при более низкой температуре осаждения подслоя.

С ростом температуры осаждения пленок LSMO в них наблюдается латеральное увеличение размеров кристаллитов в среднем от 100 до 200 нм, однако, кристаллиты титаната бария не наследуют эту тенденцию (см рис. 3).

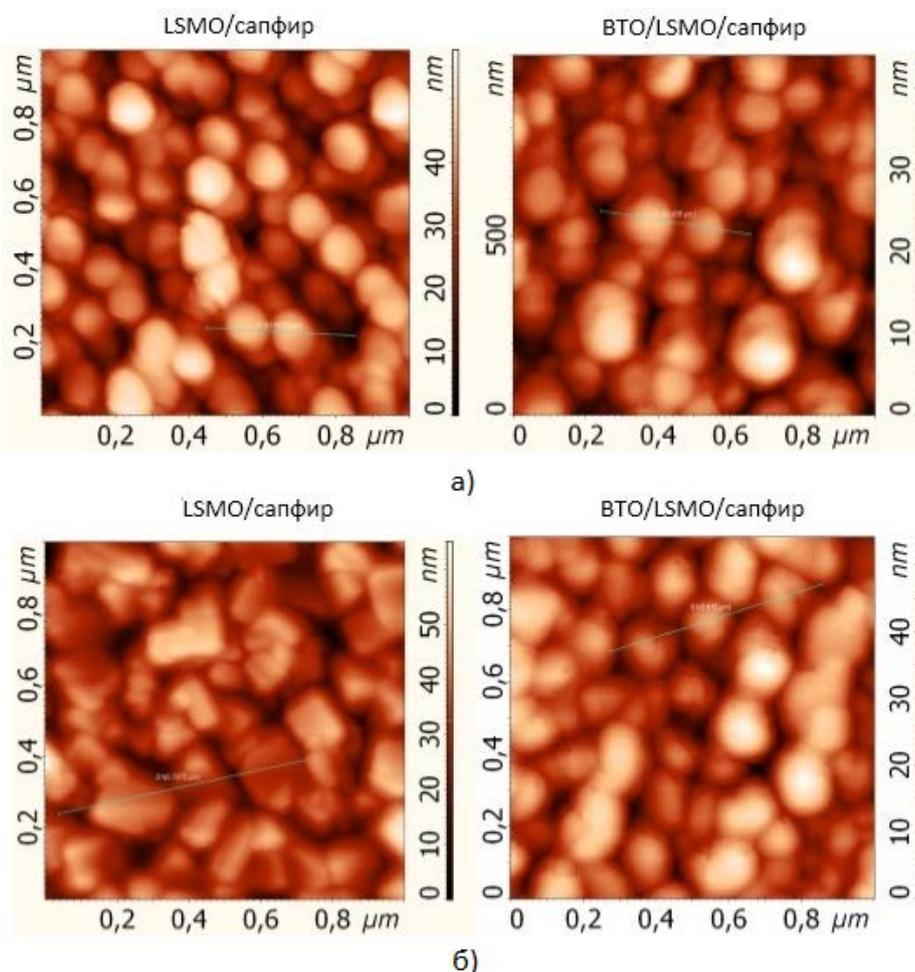


Рис.3. Морфология поверхности пленок ВТО и LSMO на сапфире. Температура осаждения подслоя LSMO при (а) – 800°C и (б) – 880°C.

С помощью метода микроскопии пьезоотклика показано, что с повышением кристаллического качества проводящего подслоя LSMO (увеличением температуры осаждения) происходит усиление эффекта поляризации титаната бария (см. рис. 4).

Анализ пьезоэлектрических изображений позволяет говорить о том, что вертикальная составляющая пьезоотклика в пленках, выращенных на высокотемпературном подслое, наиболее однородная по площади пленки, а величина сигнала существенно выше. Кроме того, распределения пьезосигнала свидетельствуют о том, что полярная ось (вектор поляризации) в большинстве блоков пленок, выращенных на высокотемпературном подслое, направлена к свободной поверхности образца, тогда как в пленках, осажденных на низкотемпературных подслоях, напротив, ориентирована по направлению к подложке.

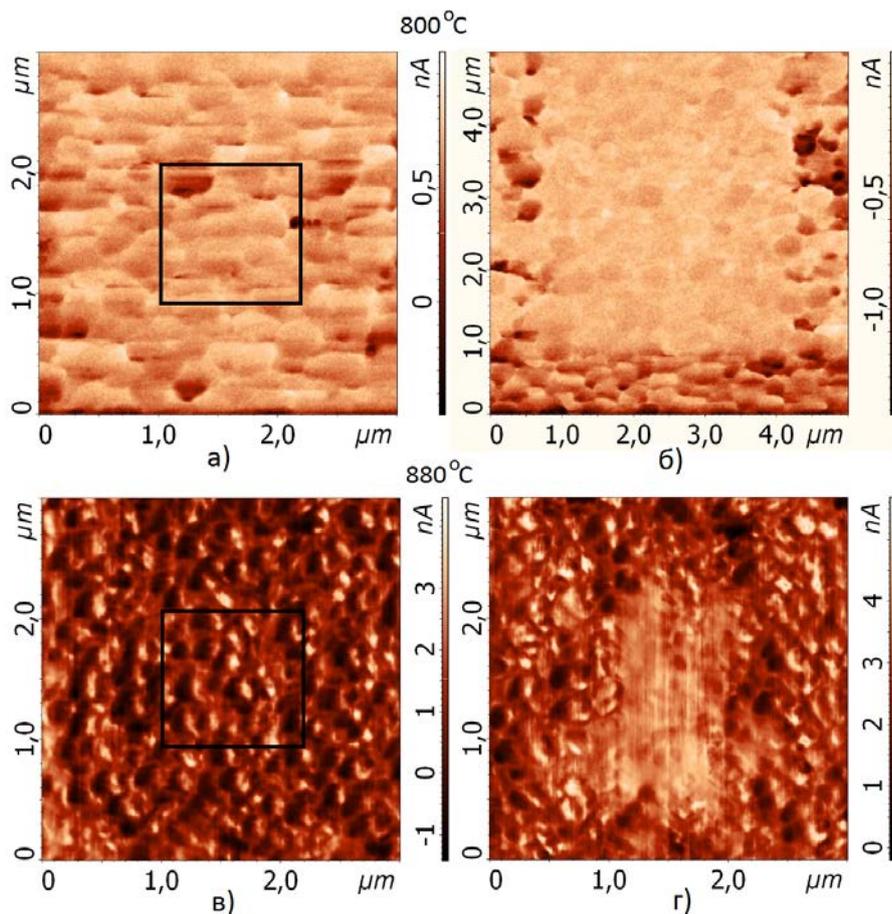


Рис. 4. Поверхность пленки ВТО до (а, в) и после (б,г) поляризационного воздействия (квадратная область) при различных температурах осаждения пленки LSMO.

При снятии локальных поверхностных ВАХ системы ВТО/LSMO/сапфир в качестве нижнего контакта использовался слой LSMO, а в качестве верхнего контакта был использован зонд атомно-силового микроскопа. Эффект переключения поляризации наблюдается в структурах, сформированных на высокотемпературном подслое LSMO (см.рис.5), тогда как ВАХ структуры с низкотемпературным нижним электродом имеет форму, характерную для омического контакта.

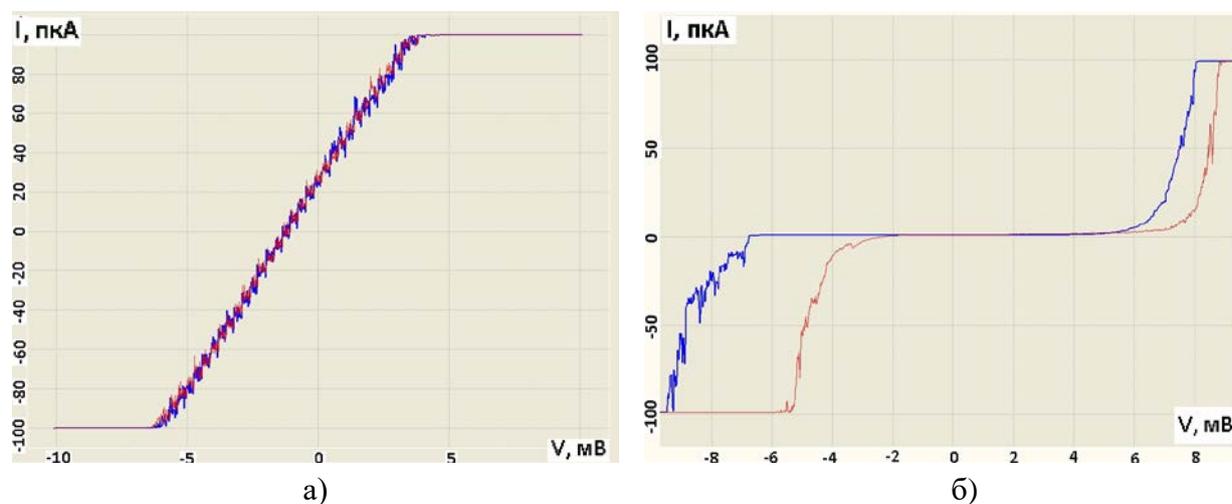


Рис. 5. Локальная поверхностная ВАХ системы ВТО/LSMO/сапфир. (а) – температура подслоя LSMO 800°C и (б) – 880 °C

В ходе работы были исследованы структурные свойства двухслойной системы, состоящей из тонкой плёнки титаната бария толщиной 20 нм на проводящем контакте LSMO на сапфировой подложке. Нанометровые слои ВТО проявляют сформированную структуру перовскита и обладают необходимыми сегнетоэлектрическими свойствами в структурах ВТО/LSMO/сапфир.

Исследование температурных режимов осаждения пленок LSMO показало, что в системе ВТО/LSMO/сапфир в целях получения качественных характеристик сегнетоэлектрического туннельного перехода в слое титаната бария, требуется оптимизация процессов нанесения подслоя манганита лантана-стронция. Можно сделать вывод, что высокотемпературный режим осаждения LSMO соответствует более качественной характеристике системы в целом. Совершенная кристаллическая структура слоя LSMO, осажденного при температуре 880°C, позволяет сформировать качественный ультратонкий слой титаната бария, по сравнению с образцами, полученными при более низкой температуре осаждения подслоя.

Библиографический список

1. Cao D. et al. Role of electrodes materials in determining the interfacial and magnetoelectric properties in BaTiO₃-based multiferroic tunnel junctions //The European Physical Journal B. – 2017. – Т. 90. – №. 10. – С. 188.
2. Abuwasib M. et al. Scaling of electroresistance effect in fully integrated ferroelectric tunnel junctions //Applied Physics Letters. – 2016. – Т. 108. – №. 15. – С. 152904.
3. Liu X., Burton J. D., Tsymbal E. Ferroelectric Tunnel Junction with a Semiconductor Electrode //APS Meeting Abstracts. – 2016.
4. Wang L. et al. Overcoming the fundamental barrier thickness limits of ferroelectric tunnel junctions through BaTiO₃/SrTiO₃ composite barriers //Nano letters. – 2016. – Т. 16. – №. 6. – С. 3911-3918.
5. Burton J. D., Tsymbal E. Thickness dependence of ferroelectric stability in SrRuO₃/BaTiO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ ferroelectric tunnel junctions //APS Meeting Abstracts. – 2016.