

Д. т. н. А. И. КАЗАКОВ, к. ф.-м. н. А. В. АНДРИЯНОВ,
В. С. МИРОНОВ, к. т. н. О. В. ПОЛЯРУШ

Украина, Одесский национальный политехнический университет
E-mail: elin@rtf.ospu.odessa.ua

Дата поступления в редакцию
05.04—18.10 2002 г.
Оппоненты к. т. н. А. Ф. АНДРЕЕВА,
к. х. н. А. В. ШЕВЧЕНКО
(ИПМ НАНУ, г. Киев)

РАСЧЕТ ЧАСТОТНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ТОНКИХ ПЛЕНОК СИСТЕМЫ $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$

На примере системы $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$ показана применимость предложенной методики для оптимизации свойств получаемых диэлектрических пленок.

На современном этапе развития микроэлектронной техники все более жесткие требования предъявляются к качеству диэлектрических пленок, особенно к воспроизводимости их характеристик и параметров. Для тонкопленочных электролюминесцентных структур (ТПЭЛС) оптимальным набором свойств обладают пленки системы $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$, которые имеют хорошие диэлектрические и оптические характеристики, высокую электрическую прочность и термодинамическую стабильность [1]. Однако применение пленок системы $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$ в пленочной микроэлектронике во многом ограничивается отсутствием данных об их свойствах. В то же время методы математического моделирования позволяют прогнозировать электрофизические характеристики получаемых пленок.

Для улучшения характеристик ТПЭЛС необходимо оптимизировать параметры используемых диэлектрических пленок ТПЭЛС таким образом, чтобы в области применяемых рабочих частот устройства (обычно 50 Гц — 10 кГц) они обладали максимальным значением диэлектрической проницаемости ϵ и минимальным значением тангенса угла диэлектрических потерь $\text{tg}\delta$.

Целью данной работы является разработка методики расчета частотной зависимости таких диэлектрических характеристик как ϵ и $\text{tg}\delta$ тонких пленок системы $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$, полученных электронно-лучевым испарением. Одним из основных преимуществ этих оксидных систем является возможность образования квазибинарных твердых растворов, что позволяет синтезировать новые материалы с заданным изменением свойств.

С термодинамической точки зрения, в многокомпонентных оксидных системах на основе редкоземельных и переходных металлов можно ожидать значительные энергетические эффекты смешения, что должно приводить к нелинейной зависимости свойств таких фаз от состава.

При испарении в вакууме смесей оксидов редкоземельных элементов наблюдается заметное отклонение состава получаемой пленки от состава испаряемого материала. Установлено, что при испарении смеси оксидов гафния и лантана происходит обедне-

ние растущей пленки гафнием, а поверхностный слой пленки обогащается HfO_2 [2]. При получении тонких пленок в системе $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$ распределение концентраций компонентов по толщине пленки носит нелинейный характер и может быть достаточно резким [1]. Это можно объяснить тем, что растворимость Nd_2O_3 в моноклинной и тетрагональной окиси гафния незначительна [3, с. 176].

Однако установлено, что кубическая высокотемпературная модификация HfO_2 может быть стабилизирована путем добавления редкоземельных оксидов в концентрациях более чем 5 мас.%. При этом образуются протяженные гетерогенные области существования кубических твердых растворов на основе высокотемпературных полиморфных модификаций HfO_2 и Nd_2O_3 типа флюорита и пироклора. Эти фазы могут быть метастабильными при низких температурах вследствие неравновесных условий осаждения и стабилизирующего влияния размерных эффектов в тонких пленках.

Описание диэлектрических свойств подобных неоднородных по толщине тонких пленок возможно на основе теории многослойного конденсатора Максвелла [4, с. 106]. Для изучаемого случая в качестве первого приближения можно представить получаемые тонкие пленки $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$ как двухслойные, в которых приповерхностный слой обогащен HfO_2 , а внутренний слой имеет состав, близкий к составу испаряемого источника. Тогда расчет частотной зависимости диэлектрических характеристик возможен на основе модели двухслойного конденсатора. Структура исследуемых образцов и соответствующая эквивалентная схема представлены на рис. 1.

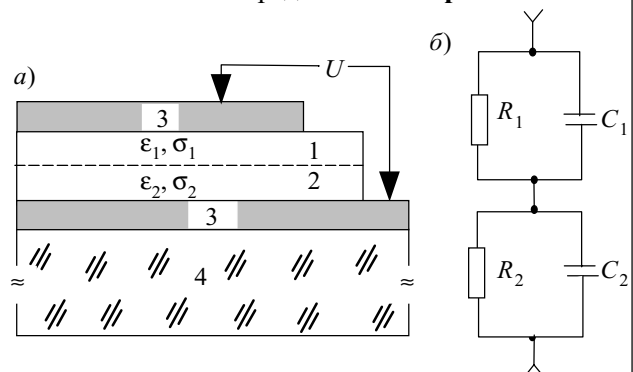


Рис. 1. Структурная (а) и эквивалентная (б) схемы МДМ-структуры на основе диэлектрических пленок $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$:

1 — поверхностный слой, обогащенный HfO_2 ; 2 — слой $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$, близкий к составу испаряемого материала; 3 — пленка Al; 4 — стеклянная подложка

Составляющие результирующей комплексной диэлектрической проницаемости пленки $\epsilon = \epsilon_r - i\epsilon'$ для используемой модели могут быть записаны как [4]:

$$\epsilon_r = \frac{(\tau_1 + \tau_2) - \tau(1 - \omega^2\tau_1\tau_2)}{C_0(R_1 + R_2)(1 + \omega^2\tau^2)}; \quad (1)$$

$$\epsilon' = \frac{1 - \omega^2\tau_1\tau_2 + \omega^2\tau(\tau_1 + \tau_2)}{\omega C_0(R_1 + R_2)(1 + \omega^2\tau^2)}, \quad (2)$$

где $\tau_1 = R_1 C_1 = \frac{\epsilon_1 \epsilon_0}{\sigma_1}$; $\tau_2 = R_2 C_2 = \frac{\epsilon_2 \epsilon_0}{\sigma_2}$;

R_1, R_2 — сопротивление;

σ_1, σ_2 — проводимость;

C_1, C_2 — емкость;

ϵ_1, ϵ_2 — диэлектрическая проницаемость соответствующих слоев;

ϵ_0 — электрическая постоянная;

$$\tau = \frac{R_1 \tau_2 + R_2 \tau_1}{R_1 + R_2} = \frac{(d_1 \epsilon_2 + d_2 \epsilon_1) \epsilon_0}{d_1 \sigma_2 + d_2 \sigma_1};$$

d_1 — толщина поверхностного слоя, обогащенного HfO_2 ;

d_2 — толщина слоя с составом, соответствующим составу испаряемого материала;

ω — циклическая частота;

$$C_0 = \epsilon_0 \frac{S}{(d_1 + d_2)};$$

S — площадь МДМ-структуры.

Тангенс угла диэлектрических потерь для двухслойной модели можно записать как

$$\text{tg} \delta = \frac{\epsilon'}{\epsilon_r} = \frac{1 - \omega^2\tau_1\tau_2 + \omega^2\tau(\tau_1 + \tau_2)}{\omega[(\tau_1 + \tau_2) - \tau(1 - \omega^2\tau_1\tau_2)]}. \quad (3)$$

Для проверки применимости модели двухслойного конденсатора была разработана экспериментальная методика получения пленок с составами, соответствующими начальной и конечной стадии процесса напыления. Исследования проводились на МДМ-структурах с тонкой диэлектрической пленкой системы $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$, которую наносили электронно-лучевым испарением из таблетированных мишеней на стеклянные подложки в вакууме $3 \cdot 10^{-3}$ Па. Технологические режимы осаждения были аналогичны приведенным в [1, 5].

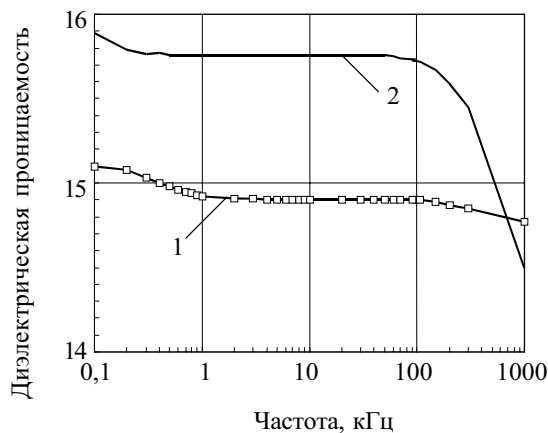


Рис. 2. Частотная зависимость диэлектрической проницаемости пленок системы $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$ (25%):

1 — эксперимент; 2 — модель

Осаждение пленки диэлектрика на подложки с предварительно напыленной проводящей пленкой проводилось с пошаговым перемещением заслонки одновременно в режимах "открывающаяся заслонка" и "закрывающаяся заслонка". При этом получалась ступенчатая конфигурация структуры с различным составом пленки. В случае режима "открывающаяся заслонка" ступенчато уменьшается толщина слоя пленки с составом, близким к составу испаряемого материала, вплоть до слоя, обогащенного HfO_2 . Эти образцы позволяют оценить состав пленки, получаемой на конечной стадии. И наоборот, в случае режима "закрывающаяся заслонка" ступенчато увеличивается толщина слоя пленки с составом, близким к составу испаряемого материала, вплоть до толщины пленки, содержащей поверхностный слой, обогащенный HfO_2 , что позволяет оценить состав пленок, получаемых на начальной стадии процесса.

В качестве электродов использовались алюминиевые пленки, получаемые резистивным испарением через маску в вакууме $5 \cdot 10^{-3}$ Па. На подложке размером 60×48 мм формировались 400 МДМ-структур размером 1×1 мм. Исследования проводились на участках с равной толщиной пленки диэлектрика.

Измерения диэлектрических параметров проводились на соответствующих МДМ-структурах. Значения ϵ_1, σ_1 измерялись на МДМ-структуре толщиной d_1 с диэлектрическими параметрами, близкими к $\text{HfO}_2, \epsilon_2, \sigma_2$ — на структуре толщиной $d_2 = d - d_1$ (d — общая толщина слоя) и составом пленки, близким к составу испаряемого материала.

В процессе роста толщина пленок контролировалась по методике, основанной на интерференции лазерных лучей. Скорость осаждения пленки диэлектрика была постоянной и стабильной и составляла 5 нм/мин, а толщина варьировалась в интервале 60...400 нм. Итоговый контроль толщины пленок проводился с помощью интерферометра МИИ-4. Значение d_1 в среднем составляло порядка 40 нм, а d_2 — 260 нм. Измерения емкости и диэлектрических потерь на разных частотах проводились мостом полных проводимостей типа МПП-300 и измерителями Е7-8, Е7-11, Е7-12.

Экспериментальная зависимость получена усреднением результатов измерений на 5 подложках, каждая из которых содержала 400 МДМ-структур. На

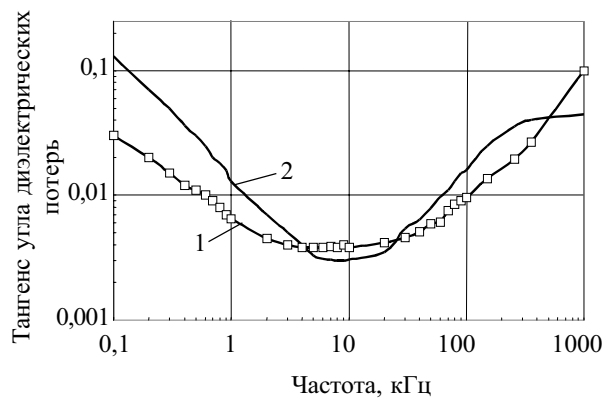


Рис. 3. Частотная зависимость $\text{tg} \delta$ пленок системы $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$ (25%):

1 — эксперимент; 2 — модель

рис. 2 и 3 показаны частотные зависимости соответственно диэлектрической проницаемости и тангенса угла диэлектрических потерь пленок $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$ (25 мас. %), измеренных и построенных в соответствии с результатами расчета по формулам (1) — (3) на основе данных, полученных на ступенчатых структурах.

Оценка адекватности используемой математической модели проводилась на основе критерия Фишера F , который определялся как отношение дисперсии адекватности модели к дисперсии воспроизводимости технологического процесса. Для модели, описывающей диэлектрическую проницаемость, величина F составляла 5,54 и для модели, описывающей тангенс угла диэлектрических потерь, — 5,67. Критическое значение критерия Фишера $F_{\text{кр}}$ для уровня значимости 0,05 составляет 5,8 [6, с. 166]. Поскольку и в том, и в другом случае выполняется соотношение $F < F_{\text{кр}}$, можно сделать вывод о том, что модель двухслойного конденсатора достаточно хорошо описывает частотную зависимость ϵ и $\text{tg}\delta$ для исследуемого материала.

С физической точки зрения наблюдаемые расхождения между моделью и экспериментальными данными для ϵ и $\text{tg}\delta$ на высоких частотах можно объяснить тем, что для исследуемого материала ионно-релаксационный тип поляризации, который предполагается основным в теории многослойного конденсатора Максвелла, на высоких частотах уже не является доминирующим, и сказывается заметное влияние других видов поляризации, в результате чего наблюдается более медленное снижение величины диэлектрической проницаемости при повышении частоты.

Данные расчета были использованы для оптимизации параметров ТПЭЛС с диэлектрической пленкой системы $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$. Это позволило повысить электрофизические и оптические характеристики тонкопленочных излучателей.

Предложенная методика расчета диэлектрических параметров пленок системы $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$ позволяет с достаточной достоверностью прогнозировать их характеристики в широком частотном диапазоне. Использование описанной методики позволяет существенно сократить масштабы технологического эксперимента при оптимизации параметров диэлектрических пленок многокомпонентных систем в соответствии с практическими требованиями.

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

1. Сухарев Ю. Г., Акулюшин И. Л., Миронов В. С. и др. Электрофизические свойства пленок систем $\text{ZrO}_2\text{—Y}_2\text{O}_3$, $\text{HfO}_2\text{—Nd}_2\text{O}_3$, $\text{HfO}_2\text{—Y}_2\text{O}_3$ // Неорган. матер.— 1994.— Т. 30, № 4.— С. 556—558.
2. Ходос М. Я., Тетерин Г. А., Журавлев Ю. Ф. и др. Вакуумные конденсаты систем $\text{HfO}_2\text{—Ln}_2\text{O}_3$ // Там же.— 1990.— Т. 26, № 11.— С. 2332—2334.
3. Глушкова В. Б., Кравчинская М. В., Кузнецов А. К., Тихонов П. А. Диоксид гафния и его соединения с оксидами редкоземельных элементов.— Л.: Наука, 1984.
4. Окадзаки К. Пособие по электротехническим материалам.— М.: Энергия, 1979.
5. Сухарев Ю. Г., Бойко В. А., Цацко В. И. и др. Получение и диэлектрические свойства пленок оксидов редкоземельных элементов // Электронная техника. Сер. Материалы.— 1987.— Вып. 4.— С. 62—65.
6. Чарыков А. К. Математическая обработка результатов химического анализа.— Л.: Химия, 1984.

в портфеле редакции в портфеле редакции в портфеле редакции в портфеле редакции

- Оценка технологического процесса изготовления СБИС по стабильности элементов ее структуры. *А. М. Вантеев, А. И. Коробов (Россия, г. Москва)*
- Радиационное легирование сульфида кадмия и арсенида галлия. *В. А. Мокрицкий, А. С. Гаркавенко, В. В. Зубарев, С. В. Ленков (Украина, гг. Одесса, Львов, Киев)*
- Оптико-электронный дальномер малых дистанций для динамических систем. *Ю. Ф. Ваксман, В. И. Сатоний, В. В. Янко, И. А. Иванченко, Л. М. Будиянская (Украина, г. Одесса)*
- Приборы определения солености воды на основе индуктивных балансных сенсоров. *О. Н. Негоденко, С. А. Черевко (Россия, г. Таганрог)*
- Определение информативных параметров импульсных сигналов при контроле качества композиционных материалов. *В. С. Еременко, С. И. Еременко (Украина, г. Киев)*
- Люминесцентные и фотоэлектрические характеристики структур на основе гетероперехода "кремний — арсенид галлия". *Л. Л. Терлецкая, Л. Ф. Калиниченко, В. В. Голубцов (Украина, г. Одесса)*
- Исследование закономерностей и моделирование процессов бесконтактного химико-механического изготовления полупроводников. *Н. Н. Григорьев, М. Ю. Кравецкий, Г. А. Пащенко, С. О. Сытко, А. В. Фомин (Украина, г. Киев)*
- Влияние кремниевой подложки на пробивное напряжение разветвленного $n^{++} - p^+$ -перехода. *В. П. Сидоренко, А. Ю. Кизяк, Ю. Е. Николаенко (Украина, г. Киев)*
- Определение диаметра луча с помощью фотоприемника. *Л. Ф. Викулина, В. А. Мингалев (Украина, г. Одесса)*

редакция в портфеле редакции в портфеле редакции в портфеле редакции в портфеле