



HAL
open science

Caractérisation de couches minces ferroélectriques de BaSrTiO 3 pour applications microondes reconfigurables

Kevin Nadaud, Caroline Borderon, Raphaël Renoud, Hartmut W. Gundel,
Raphaël Gillard, Erwan Fourn

► To cite this version:

Kevin Nadaud, Caroline Borderon, Raphaël Renoud, Hartmut W. Gundel, Raphaël Gillard, et al..
Caractérisation de couches minces ferroélectriques de BaSrTiO 3 pour applications microondes re-
configurables. 19èmes Journées Nationales Microondes, Jul 2015, Bordeaux, France. pp.954-957.
hal-01279645

HAL Id: hal-01279645

<https://hal.science/hal-01279645>

Submitted on 26 Feb 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Caractérisation de couches minces ferroélectriques de BaSrTiO₃ pour applications microondes reconfigurables

Kevin Nadaud¹, Caroline Borderon¹, Raphaël Renoud¹, Hartmut W. Gundel¹, Raphaël Gillard² et Erwan Fourn²

¹IETR UMR CNRS 6164, Université de Nantes, 2 rue de la Houssinière, 44322 Nantes Cedex 3

²IETR UMR CNRS 6164, INSA de Rennes, 20 avenue des Buttes de Coësmes CS 70839 35708 Rennes Cedex 7
kevin.nadaud@etu.univ-nantes.fr

Résumé Dans cette communication, les propriétés d'une couche mince ferroélectrique de BaSrTiO₃ sont présentées en fonction de la fréquence et du champ appliqué. Une optimisation du matériau par un dopage approprié a été effectuée pour obtenir des pertes diélectriques les plus faibles possibles et maintenir une accordabilité importante. L'accordabilité obtenue est de 60 % sous un champ de 430 kV/cm de 1 kHz à 5 GHz. Des pertes diélectriques $\tan\delta$ de 0,02 sont mesurées en dessous 1 GHz. La stabilité en température du matériau a également été vérifiée. Ces propriétés font de ce matériau un candidat intéressant pour les applications micro-ondes reconfigurables.

1. Introduction

Actuellement, les systèmes sans fil ont de plus en plus de contraintes sur leurs performances et sur le nombre de standards gérés. Pour répondre à cette demande, les dispositifs hyperfréquences sont désormais reconfigurables. Pour rendre les circuits ou les antennes actifs, on utilise actuellement des diodes varicap, PIN (*Positive Intrinsic Negative*), des MEMS (*MicroElectroMechanical System*) ou encore des cristaux liquides.

Une voie alternative consiste à utiliser les matériaux ferroélectriques. Leur principal avantage est l'absence de courant continu pour la polarisation, contrairement aux diodes, et l'absence de pièce en mouvement, contrairement aux MEMS. Ces deux avantages font des condensateurs ferroélectriques des composants fiables et présentant de surcroît une consommation quasiment nulle.

Dans cette communication, les propriétés d'une couche mince ferroélectrique optimisée sont présentées en fonction de la température, de la fréquence et du champ appliqué pour montrer toutes ses potentialités dans le domaine.

2. Les matériaux ferroélectriques

Les matériaux ferroélectriques sont des matériaux non linéaires, anisotropes qui ont comme principale propriété une permittivité diélectrique dépendante du champ continu appliqué. Ainsi, ils permettent de réaliser des capacités variables intégrables dans des dispositifs hyperfréquences afin de les rendre reconfigurables [1].

Pour ces matériaux, la permittivité provient de deux

contributions, celle de la maille (qui est la plus importante) et celle des mouvements de parois de domaines [2, 3]. La part dans la permittivité globale des mouvements de parois est dépendante du type de ferroélectrique considéré. Elle est relativement forte sur les matériaux tels que le PZT (Titanate et Zirconate de Plomb) et plus faible sur les matériaux tels que le BST (Titanate de Baryum et de Strontium) [2]. Pour les applications hyperfréquences, il est préférable de minimiser la contribution des parois car elle peut être la source de pertes très importantes. Pour ces raisons, les matériaux tels que le BST sont privilégiés pour réaliser des condensateurs accordables.

Pour être utilisé dans un dispositif reconfigurable, le matériau doit avoir une accordabilité la plus importante possible et des pertes diélectriques les plus faibles possibles. Cependant, comme les deux propriétés sont en général liées, le facteur de mérite (*FoM*) est défini pour refléter le fait qu'un dispositif reconfigurable ne pourra pas utiliser une forte accordabilité si les pertes sont fortes [4]. Il est défini de la manière suivante :

$$FoM = \frac{n_r}{\tan \delta(\%)}, \quad (1)$$

avec $\tan \delta(\%)$ les pertes exprimées en pourcentage et n_r l'accordabilité relative définie de la manière suivante [4] :

$$n_r = \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(E)}{\varepsilon_r(0)} \times 100, \quad (2)$$

avec $\varepsilon_r(0)$ et $\varepsilon_r(E)$ permittivité sans et avec un champ appliqué E .

3. Élaboration du matériau

Le matériau choisi est le Ba_{0,80}Sr_{0,20}TiO₃ car son accordabilité est relativement élevée et ses pertes diélectriques modérées. Le rapport Ba/Sr a été choisi pour que le matériau soit dans la phase ferroélectrique avec la température de Curie proche de la température ambiante, ce qui permet d'avoir une accordabilité importante [5]. Un autre avantage de ce matériau est son champ coercitif qui est assez faible, ce qui facilite le circuit de commande car l'effet d'hystérésis est peu marqué.

Le matériau utilisé est élaboré couche par couche sur un substrat d'alumine grâce à un procédé sol-gel modifié [2, 3]. La solution précurseur est déposée sur le substrat par centrifugation. Un recuit à 750 °C est effectué

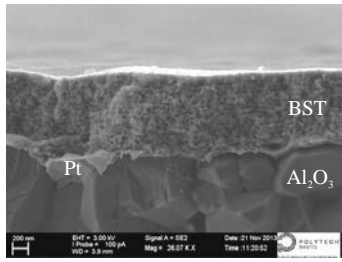


Figure 1. Coupe transversale d'une couche mince déposée sur un substrat d'alumine platine.

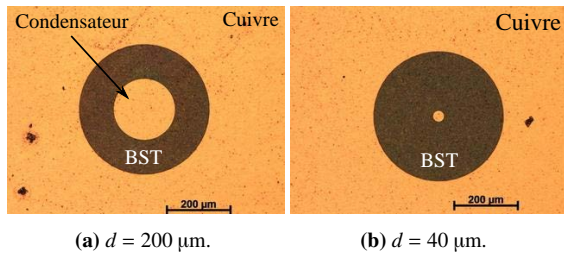


Figure 2. Photographies des structures utilisées pour la mesure de la permittivité.

après chaque dépôt afin de cristalliser le matériau. Ces deux étapes sont répétées autant de fois que nécessaire pour obtenir l'épaisseur voulue. Avec 14 couches déposées, l'épaisseur typiquement obtenue est de 925 nm. Une coupe transversale du matériau est présentée Figure 1. Dans les cas où un plan de masse est nécessaire en dessous du matériau (pour la caractérisation par exemple), le substrat d'alumine est recouvert d'une couche de 200 nm de platine avant le dépôt du ferroélectrique. Le platine a été choisi pour sa résistance à l'oxydation lors des recuits. La température importante et le caractère acide de la solution empêche d'utiliser des métaux plus conducteurs comme le cuivre. Afin de réduire les pertes du matériau et de pouvoir le polariser sans le détériorer, un dopage avec 1 % de manganèse a été effectué [3]. Ce dopage permet également de réduire la contribution des parois de domaines qui est fortement dissipative.

4. Propriétés diélectriques

Le matériau présenté a été caractérisé en fonction de la température, de la fréquence et du champ DC appliqué. Les caractérisations ont été effectuées grâce à une structure Métal Isolant Métal. Pour les mesures en fonction de la température, du platine a été utilisé pour l'électrode supérieure également car il ne s'oxyde pas même lorsque la température devient élevée. Pour les mesures à hautes fréquences, du cuivre a été utilisé afin de réaliser la structure présentée Figure 2 car c'est un bon conducteur. Dans le cas des caractérisations basses fréquences (jusqu'à 10 MHz), un impédancemètre et une amplitude du champ AC de $0,5 \text{ V}/\mu\text{m}$ ont été utilisés. Pour les fréquences entre 10 MHz et 10 GHz un analyseur de réseaux [6] et une puissance de -17 dBm ont été employés.

4.a. Étude en fonction de la température

La stabilité des propriétés diélectriques en fonction de la température est un point important pour les maté-

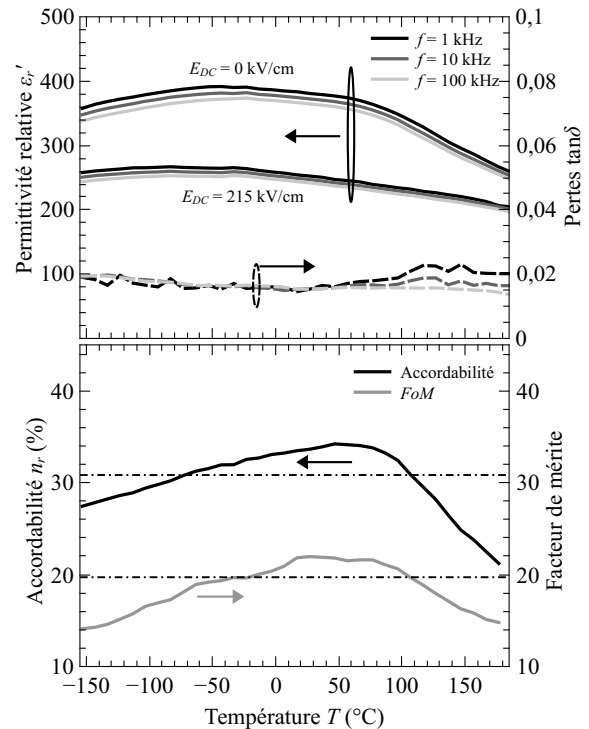


Figure 3. Permittivité relative, pertes accordabilité et facteur de mérite en fonction de la température pour différentes fréquences.

riaux inclus dans les dispositifs micro-ondes. Les ferroélectriques étant également des pyroélectriques, la dépendance en température doit absolument être mesurée. La température de Curie du matériau est d'environ 60°C pour la composition choisie, des changements sont donc attendus dans cette zone. La permittivité (avec et sans champ) et les pertes ont été mesurées en fonction de la température de -150°C à 170°C et les résultats sont reportés Figure 3.

Comme on peut le constater, la permittivité varie lentement avec la température contrairement à ce qui est obtenu avec des mono-cristaux [7]. Un plateau est visible dans une bande allant de -80°C à 20°C dans laquelle la permittivité varie de moins de 2%. Une meilleure stabilité est obtenue par rapport à la littérature [8] où une structure multicouche a été utilisée pour augmenter cette stabilité. L'évolution des pertes est extrêmement lente également. Une légère remontée est présente à toutes les fréquences à basses températures. Pour les basses fréquences et hautes températures une remontée est également visible et est due à la diffusion qui est un mécanisme thermiquement activé. Néanmoins, les pertes restent inférieures à 0,016 entre -40°C à 170°C . On peut noter que les pertes à 100 kHz diminuent peu lorsque le matériau entre dans la phase paraélectrique.

Un champ de polarisation a été également appliqué sur la couche lors de la mesure en température afin de connaître l'évolution de l'accordabilité avec la température. Les résultats de mesures sont présentés Figure 3. On peut voir que l'accordabilité est maximale autour de 60°C ce qui correspond à la température de Curie de cette composition. Comme la permittivité avec champ évolue

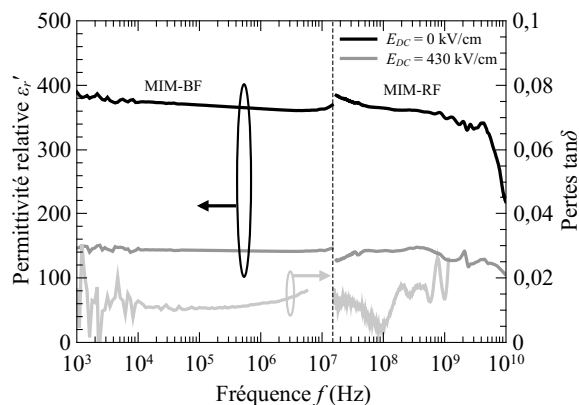


Figure 4. Permittivité relative et pertes en fonction de la fréquence.

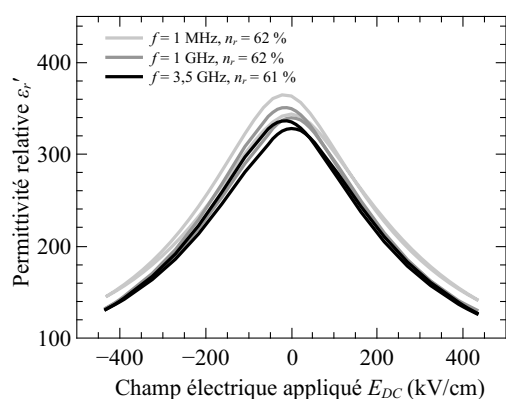


Figure 5. Permittivité relative et pertes en fonction du champ DC appliqué.

lentement, l'accordabilité reste supérieure à 90 % de sa valeur maximale dans une bande relativement large (-70 °C à 100 °C). Ainsi, le facteur de mérite est également très stable. Cette stabilité du facteur de mérite est supérieure à ce qui a été obtenu dans la littérature [8].

4.b. Mesure en fonction de la fréquence

La Figure 4 présente les résultats de mesure en fonction de la fréquence réalisée avec les deux méthodes. On peut noter que la permittivité relative sans champ de polarisation décroît légèrement avec la fréquence. L'application d'une tension de polarisation permet de déterminer l'accordabilité du matériau et de vérifier qu'elle est encore présente à hautes fréquences. La limite de la méthode est atteinte pour une fréquence d'environ 5 GHz. Au-delà,

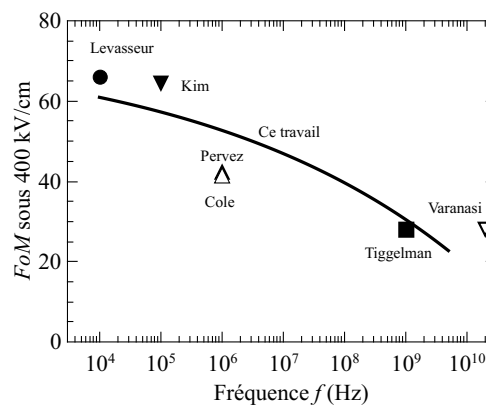


Figure 6. Facteurs de qualité obtenus dans la littérature et dans ce travail sous un champ électrique appliqué de 400 kV/cm en fonction de la fréquence.

la permittivité chute brutalement. Cela est dû à des phénomènes de propagation dans la structure MIM [14]. En effet, à cause des pertes dans les conducteurs et de la forte permittivité du matériau, le condensateur peut être vu comme une association en échelle de résistances et de capacités qui se comporte comme un filtre passe-bas. Si la permittivité du matériau ou la résistivité des électrodes augmentent, la fréquence de coupure va être faible et les phénomènes de propagation plus importants. Ces effets de propagations se traduisent par une capacité apparente qui diminue et des pertes qui augmentent [14]. Pour y remédier, il faut utiliser des électrodes plus conductrices, l'utilisation d'or recouvert de platine (résistance à la corrosion) comme électrode inférieure est envisagée pour augmenter la fréquence accessible avec cette méthode de mesure.

Des pertes diélectriques de 0,02 sont mesurées jusqu'à 1 GHz. Au-delà, les valeurs obtenues sont erronées car des phénomènes de propagation dues à la faible conductivité de l'électrode inférieure et à la forte permittivité du matériau perturbent l'extraction des pertes diélectriques.

La permittivité relative en fonction du champ DC appliqué est présentée Figure 5. L'accordabilité du matériau est supérieure à 60 % pour un champ appliqué de 430 kV/cm (correspondant à 40 V sur la couche de 925 nm). On peut noter que l'effet d'hystérésis est assez faible, surtout sur la branche positive. Ainsi, l'utilisation d'une tension de commande unipolaire positive permet d'obtenir un état bien défini de la permittivité.

Pour pouvoir comparer les données présentées dans

Tableau 1. Comparaison des caractéristiques diélectriques obtenues dans la littérature sous un champ électrique appliqué de 400 kV/cm.

Substrat	Méthode de dépôt	Fréquence de mesure	n_r	$\tan \delta$	FoM	Référence
Si	PLD	20 GHz	76 %	0,027	28	[9] ▽ Varanasi
Si	Solgel	1 GHz	44 %	0,015	28,5	[10] ■ Tiggelman
Si	Solgel	1 MHz	52 %	0,0125	41,6	[8] △ Cole
Saphir	Pulvé	1 MHz	52 %	0,013	42,4	[11] ▲ Pervez
Si	Solgel	100 kHz	42 %	0,0065	64,6	[12] ▼ Kim
Si	Solgel	10 kHz	60 %	0,009	66,6	[13] ● Levasseur

cet article avec la littérature, le facteur de mérite sous 400 kV/cm est donné sur la Figure 6 (en fonction de la fréquence) et dans le Tableau 1. On peut remarquer qu'il décroît avec la fréquence ce qui est principalement dû au fait que les pertes augmentent. Comme on peut le voir, le matériau proposé a des bonnes caractéristiques par rapport à ce qui est obtenu dans la littérature. Même si les *FoM* des matériaux proposés par Kim et par Levasseur sont au-dessus, l'absence de donnée à hautes fréquences empêche de faire une comparaison complète. De plus, pour ces matériaux, la dépendance des propriétés en fonction de la température n'est pas donnée.

5. Conclusion

Dans cette communication, les propriétés d'une couche mince optimisée de BST sont présentées. Les caractérisations montrent que l'accordabilité du matériau reste importante même à hautes fréquences. Ainsi, une accordabilité de 60 % est obtenue jusqu'à 5 GHz avec un champ électrique appliqué de 430 kV/cm. Des faibles pertes diélectriques ($\tan \delta$) de 0,02 ont été obtenues.

Une très bonne stabilité en température est obtenue sur la matériau car la permittivité varie de moins de 2 % dans une gamme de 100 °C et le facteur de mérite est supérieur à 90 % de sa valeur maximale dans une bande de 120 °C.

Des études sont actuellement en cours pour réduire les phénomènes de propagation dans la structure MIM. L'objectif est d'étendre au-delà de 10 GHz la caractérisation diélectrique de couches minces sans et avec champ appliqué et d'obtenir une mesure plus fiable du $\tan \delta$ dans la gamme des microondes.

Remerciements

Les auteurs souhaitent remercier le CNRS et la région Pays de la Loire pour leur soutien financier.

Références

- [1] K. Nadaud *et al*, "A simple Phase-Shifting cell for reflectarray using a slot loaded with a ferroelectric capacitor," in *Loughborough Antennas and Propagation Conference*, 2014, pp. 214–217.
- [2] C. Borderon, "Développement et étude des matériaux ferroélectriques accordables en vue d'une application pour les antennes intelligentes," Ph.D. dissertation, Université de Nantes, Octobre 2008.
- [3] K. Nadaud *et al*, "Effect of manganese doping of BaSrTiO₃ on diffusion and domain wall pinning," *Journal of Applied Physics*, vol. 117, no. 8, p. 084104, 2015.
- [4] H. Al-Shareef *et al*, "Tunability and calculation of the dielectric constant of capacitor structures with interdigital electrodes," *Journal of Electroceramics*, vol. 1, no. 2, pp. 145–153, 1997.
- [5] V. V. Lemanov *et al*, "Phase transitions and glasslike behavior in Sr_{1-x}Ba_xTiO₃," *Phys. Rev. B*, vol. 54, pp. 3151–3157, 1996.
- [6] Z. Ma *et al*, "RF measurement technique for characterizing thin dielectric films," *IEEE Transactions on Electronics Devices*, vol. 45, pp. 1811–1816, 1998.
- [7] T. M. Shaw *et al*, "The effect of stress on the dielectric properties of barium strontium titanate thin films," *Applied Physics Letters*, vol. 75, no. 14, pp. 2129–2131, 1999.
- [8] M. W. Cole *et al*, "The fabrication and material properties of compositionally multilayered Ba_{1-x}Sr_xTiO₃ thin films for realization of temperature insensitive tunable phase shifter devices," *Journal of Applied Physics*, vol. 102, no. 3, p. 034104, 2007.
- [9] C. Varanasi *et al*, "Large area Ba_xSr_{1-x}TiO₃ thin films for microwave applications deposited by pulsed laser ablation," *Thin Solid Films*, vol. 517, no. 9, pp. 2878–2881, 2009.
- [10] M. P. J. Tiggelman, "Thin film barium strontium titanate capacitors for tunable RF front-end applications," Ph.D. dissertation, University of Twente, 2009.
- [11] N. K. Pervez *et al*, "High tunability barium strontium titanate thin films for rf circuit applications," *Applied Physics Letters*, vol. 85, no. 19, pp. 4451–4453, 2004.
- [12] K.-T. Kim and C.-I. Kim, "The effect of Cr doping on the microstructural and dielectric properties of (Ba_{0.6}Sr_{0.4})TiO₃ thin films," *Thin Solid Films*, vol. 472, no. 1-2, pp. 26–30, 2005.
- [13] D. Levasseur *et al*, "Systematic tuning of the conduction mechanisms in ferroelectric thin films," *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 25, no. 49, p. 495901, 2013.
- [14] M. P. J. Tiggelman *et al*, "Identifying dielectric and resistive electrode losses in high-density capacitors at radio frequencies," in *Proc. IEEE Int. Conf. Microelectronic Test Structures*, 2008, pp. 190–195.