



Institut für Schichten und Grenzflächen
Institut 2: Bio- und Chemosensoren

***Lineare und nichtlineare dielektrische
Eigenschaften abstimmbarer SrTiO_3 -Schichten
bei hohen Frequenzen***

Roland Ott

***Lineare und nichtlineare dielektrische
Eigenschaften abstimmbarer SrTiO₃-Schichten
bei hohen Frequenzen***

Roland Ott

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 4098

ISSN 0944-2952

Institut für Schichten und Grenzflächen

Institut 2: Bio- und Chemosensoren Jül-4098

D 38 (Diss., Köln, Univ., 2003)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

☎ 02461 61-5220 · Telefax: 02461 61-6103 · e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de

Kurzzusammenfassung

Ferroelektrische Materialien bieten sich aufgrund ihrer mit einem äußeren elektrischen Feld abstimmbaren dielektrischen Eigenschaften für eine Reihe moderner Hochfrequenzanwendungen an. Besonders im Hinblick auf die Integration in frequenzabstimmbare Hochfrequenzbauelemente (z. B. des Mobilfunks) sind die linearen wie nichtlinearen dielektrischen Eigenschaften dünner ferroelektrischer SrTiO_3 -Schichten von enormen Interesse.

In dieser Arbeit werden daher zunächst die strukturellen und dielektrischen Eigenschaften dünner SrTiO_3 -Schichten untersucht. Die Gitterverspannung der abgeschiedenen epitaktischen SrTiO_3 -Schichten erweist sich als entscheidender Einfluss auf die dielektrischen Eigenschaften. Korrelationen sowohl der Dielektrizitätskonstanten, der durch die Schichten erzeugten Verluste als auch der für die Anwendung wichtigen dielektrischen Abstimmbarkeit der Filme mit den strukturellen Eigenschaften der Filme werden nachgewiesen. Diese Ergebnisse werden im Rahmen eines thermodynamischen Modells erklärt, das den Einfluss der Gitterverspannung auf die Polarisation der verspannt aufgewachsenen Schichten berücksichtigt.

Als ideales Werkzeug für die Untersuchung der nichtlinearen dielektrischen Eigenschaften erweist sich die Messung der sogenannten Intermodulationsstörungen, die durch die Einstrahlung zweier leicht frequenzverschobener primärer Signale in Systeme mit nichtlinearen Eigenschaften erzeugt werden. Als Ursache für die Generation der Intermodulationsstörungen in SrTiO_3 -Schichten werden zwei Anteile nachgewiesen: zum einen die Nichtlinearität der Dielektrizitätskonstante der SrTiO_3 -Schicht, zum anderen die einsetzende Leitfähigkeit der Schicht bei extrem hohen Fundamentalleistungen. Das Zusammenspiel dieser beiden Ursachen führt zu einem recht ungewöhnlichen Verlauf der Abhängigkeit der Intermodulationsstörungen von der Leistung der eingestrahlten Signale. Die nichtlineare Kapazität erzeugt zudem Intermodulationsstörungen höherer Ordnung.

Schließlich wird der Einfluss der geometrischen Anordnung des Ferroelektrikums in einem Hochfrequenzbauelement untersucht. Unterschiedliche Varaktordesigns werden theoretisch und experimentell analysiert. Es zeigt sich, dass mittels eines hier weiterentwickelten Modells für die Beschreibung von komplexen Kapazitäten die kapazitiven Eigenschaften von planaren Strukturen bis ca. $4\mu\text{m}$ gut beschrieben werden. Anhand dieser Analyse wurde im Rahmen dieser Arbeit eine verbesserte Varaktorgeometrie für die Integration in abstimmbare Hochfrequenzbauelemente vorgestellt. Diese zeigt gegenüber dem planaren Standarddesign eine um ca. 300% verbesserte Abstimmbarkeit und um ca. 50% reduzierte Verluste. Schon für extrem kleine Steuerspannungen von $U_{\text{dc}} < 20\text{V}$ bietet der Qualitätsfaktor dieser Geometrie für die Anwendung ausreichend gute Werte.

Abstract

Due to the dependence of their dielectric properties on an external electrical field, ferroelectric materials prove to be of interest for a number of modern radio-frequency (rf) applications. Especially for their integration into frequency-tunable rf-devices (i.e. for mobile communications) the linear and nonlinear dielectric properties of thin ferroelectric SrTiO₃-films are of interest.

Therefore, in this work the structural as well as the dielectric properties of thin SrTiO₃-films are being examined. The lattice strain of the epitaxial deposited SrTiO₃ films is proven to strongly effect the dielectric properties. Correlations of the dielectric constant, the rf loss, the dielectric tunability and the structural properties are demonstrated. The results are explained in terms of a thermodynamic model that describes the influence of lattice strain on the polarization of the SrTiO₃ films.

Experimental determination of the intermodulation distortion (IMD) proves to be an ideal tool for the examination of the nonlinear dielectric properties of the films. IMDs are generated by applying two fundamental rf-signals of slightly different frequencies to systems with nonlinear properties. Two different origins of IMD-signals are being verified for our SrTiO₃-films: the nonlinear behaviour of the dielectric constant and the onset of conductivity at extremely high fundamental rf-powers. The coaction of both mechanisms leads to a rather unusual dependence of the IMD signals on the power of the fundamental signals. Furthermore, the nonlinear dielectric constant generates IMD signals of higher orders i , i.e. $i = 3, 5, 7, 9$.

Finally, the influence of the geometry of integrated ferroelectric elements upon the performance of any device is examined. Different varactor designs are analyzed theoretically and experimentally. It turns out that the properties of complex varactors with structured dimensions down to 4 μ m can be described in terms of an improved model of parallel capacitors. Via this analysis, novel varactor geometry for the integration in tunable rf-devices is presented. In comparison with the standard planar capacitor, the tunability of the device is improved by about 300% and the rf losses are reduced by about 50%. The quality factor exceeds $K \geq 50$ (i.e. sufficient for most applications) already at extremely low operating voltages of $U_{dc} < 20V$. The standard planar capacitor and the new vertical capacitor are well described by the model of parallel capacitors.

Inhaltsverzeichnis

KURZZUSAMMENFASSUNG	
ABSTRACT	
INHALTSVERZEICHNIS	1
1 EINLEITUNG.....	3
2 GRUNDLAGEN	7
2.1 MATERIE IN ELEKTROMAGNETISCHEN FELDERN	7
2.2 DIELEKTRIZITÄT	8
2.3 FERROELEKTRIZITÄT	11
2.4 FERROELEKTRIKA DES BaTiO₃-TYPUS	14
2.4.1 Kristalline Eigenschaften	14
2.4.2 Strontiumtitanat	16
2.5 SrTiO₃-FILME.....	17
2.5.1 Einfluss von Stöchiometrie und Defekten.....	18
2.5.2 Körner und Korngrenzen.....	19
2.5.3 Einfluss von Schichtrauigkeit, Schichtdicke und Grenzschichten	20
2.6 ABSTIMMBARKEIT UND NICHTLINEARES VERHALTEN VON FERROELEKTRIKA ...	20
2.6.1 Abstimmbarkeit der Dielektrizitätskonstanten.....	21
2.6.2 Qualitätsfaktor K	22
2.6.3 Nichtlineare Mechanismen und Intermodulationsstörungen.....	22
3 PRÄPARATION UND CHARAKTERISIERUNG.....	27
3.1 HERSTELLUNG DER SrTiO₃-SCHICHTEN	27
3.1.1 Substratauswahl.....	27
3.1.2 Schichtdeposition	29
3.2 CHARAKTERISIERUNG DER STRUKTUR DER SrTiO₃-SCHICHTEN.....	31
3.2.1 Röntgendiffraktometrie	31
3.3 DIELEKTRISCHE DÜNNSCHICHTTESTSTRUKTUREN	32
3.3.1 Strukturierung der Schichten und Schichtsysteme.....	32

3.3.2	Beschreibung der Eigenschaften von hf-Bauelementen.....	34
3.3.3	PC-Simulationen von hf-Bauelementen mit Hilfe von „Sonnet“.....	35
3.3.4	Dielektrizitätsmessplatz	36
3.3.5	Intermodulationsmessplatz.....	39
3.3.6	Planare Kapazitätsgeometrie	41
4	EXPERIMENTELLE ERGEBNISSE UND DISKUSSION	45
4.1	STRUKTURELLE UND DIELEKTRISCHE EIGENSCHAFTEN DER	45
	SRTiO₃-SCHICHTEN	45
4.1.1	Kristalline Eigenschaften	46
4.1.2	Dielektrizitätskonstante.....	52
4.1.3	Dielektrische Verluste	56
4.1.4	Abstimmbarkeit.....	59
4.1.5	Diskussion	62
4.2	NICHTLINEARE MIKROWELLENEIGENSCHAFTEN DER SRTiO₃-SCHICHTEN	69
4.2.1	Intermodulationsmessungen.....	69
4.2.2	Temperaturabhängigkeit der IMD-Signale	72
4.2.3	hf-Leistungs- und dc-Spannungsabhängigkeit der IMD-Signale.....	74
4.2.4	Intermodulationen höherer Ordnung.....	77
4.2.5	Diskussion	80
4.3	OPTIMIERTE SRTiO₃-KAPAZITÄTEN FÜR DIE ANWENDUNG	84
4.3.1	Herstellung vertikaler Kapazitäten.....	86
4.3.2	Charakterisierung vertikaler Kapazitäten.....	89
4.3.3	Diskussion	92
5	ZUSAMMENFASSUNG.....	97
	LITERATURVERZEICHNIS	101

1 Einleitung

Die Erforschung der Titanate geht maßgeblich auf Arbeiten des amerikanischen Physikers A. von Hippel und seinen Mitarbeitern am Massachusetts Institute of Technology während des zweiten Weltkriegs zurück. Da diese Arbeiten einer durch den Krieg bedingten Geheimhaltung unterlagen, konnten die Ergebnisse dieser Forschungen erst nach Kriegsende veröffentlicht werden [Hipp44]. Ein Resultat dieser und anderer fast zeitgleich in England ([Jack45], [Mega45], [Rook45]), Russland ([Vul45], [Ginz46], [Vul45b]) und Japan [Miya45] veröffentlichter Arbeiten war der Nachweis der Ferroelektrizität in dem Perowskitkristall Bariumtitanat (BaTiO_3). Diese Entdeckung war die Grundlage für den Nachweis ferroelektrischer Eigenschaften in einer Reihe von weiteren Vertretern der Gruppe der Perowskite und insbesondere der Titanate, zum Beispiel PbTiO_3 , CaTiO_3 oder SrTiO_3 .

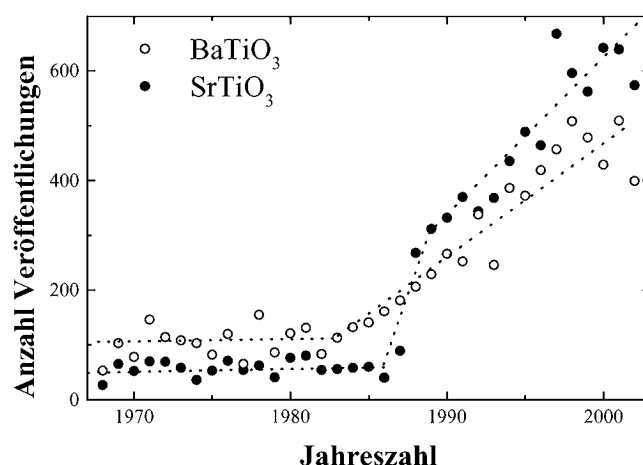


Abb. 1 Anzahl der jährlichen wissenschaftlichen Veröffentlichungen zum Thema „ BaTiO_3 “ und „ SrTiO_3 “ [Insp03].

Die lange Zeit stagnierende Forschung an diesen Materialien hat in den letzten Jahren durch den sich rasch entwickelnden Bedarf gleich mehrerer neuer Technologiegebiete entscheidende neue Impulse erfahren (siehe Abb. 1). Genannt seien hier besonders die Suche der Computerindustrie nach Alternativen im Bereich der Speichermedien (DRAMs und FeRams), aber auch die Kommunikationstechnologie mit einer starken Nachfrage nach schnell abstimmbaren Hochfrequenzfiltern und Resonatoren (insbesondere für den Mobilfunksektor) oder die Entwicklung von Phasenschiebern für superdirektive Antennen. Für diese Anwendungsfelder bieten sich die Ferroelektrika aufgrund ihrer hohen Dielektrizitätskonstanten an, die sich in einigen Fällen durch das Anlegen eines elektrischen Feldes modifizieren lassen. Die Integration dieser Materialien in Dünnschichtbauelemente ist daher von hohem wirtschaftlichen Interesse. Dieser möglichen Integration von SrTiO_3 in Hochfrequenzbauelemente ist diese Arbeit gewidmet.

Im Fokus dieser Arbeit stehen die Untersuchungen der linearen, aber auch nichtlinearen dielektrischen Eigenschaften dünner ferroelektrischer SrTiO_3 -Schichten und deren Integration

in Varaktoren für Hochfrequenzbauelemente. Dabei konzentrieren sich die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente auf die folgenden drei Themengebiete:

- (i) Systematische Untersuchung der Zusammenhänge zwischen den unterschiedlichen Materialeigenschaften, insbesondere den strukturellen und dielektrischen Eigenschaften, mit dem Ziel eines grundlegenden Verständnisses der diesen Eigenschaften zugrunde liegenden Mechanismen.
- (ii) Die Untersuchung der nichtlinearen Mikrowelleneigenschaften der SrTiO_3 -Schichten. Die in diesem Bereich interessanten Eigenschaften, wie z. B. die Intermodulationsstörungen, sind bisher weitestgehend nicht untersucht worden, spielen aber besonders in der Beurteilung der SrTiO_3 -Schichten hinsichtlich ihrer Integrierbarkeit in Bauelementen für hohe hf-Leistungen (z.B. in der Kommunikationstechnologie) eine vielleicht entscheidende Rolle.
- (iii) Integration der SrTiO_3 -Schichten in erste hf-Teststrukturen. Hierbei sollen die möglichen Probleme einer Integration aufgezeigt werden und am Beispiel abstimmbarer Kapazitäten (Varaktoren) für abstimmbare hf-Filter demonstriert werden, dass (a) kleinste SrTiO_3 -Strukturen erstellt und integriert werden können und (b) das Design der Teststruktur einen entscheidenden Einfluss auf die Eigenschaften und Qualität des Bauelementes hat. Hierbei soll insbesondere auch die langfristige Perspektive einer Integration in hochtemperatursupraleitende Bauelemente beachtet werden, die sich durch extrem niedrige Mikrowellenverluste auszeichnen.

Aufgrund dieser Untersuchungsschwerpunkte ist die Arbeit wie folgt gegliedert:

In Kapitel 2 werden zunächst die theoretischen und experimentellen Grundlagen dieser Arbeit dargelegt. Dabei werden zunächst einige allgemeine, für das Verständnis dieser Arbeit wichtige Begriffe erläutert, anschließend wird das Phänomen der Ferroelektrizität vorgestellt und erläutert und näher auf die Ferroelektrika des BaTiO_3 -Typs eingegangen, in die auch das im Rahmen dieser Arbeit untersuchte SrTiO_3 eingeordnet ist. Des weiteren wird auf die Unterschiede zwischen den SrTiO_3 -Einkristallen und den SrTiO_3 -Schichten eingegangen. Im letzten Abschnitt des Kapitels wird dann der mögliche Einsatz von SrTiO_3 -Schichten in Bauelementen der Hochfrequenztechnik diskutiert. Es wird die Abstimmbarkeit der dielektrischen Eigenschaften der Filme erläutert, ein Qualitätsfaktor zur Bewertung der Schichten hinsichtlich ihrer Einsetzbarkeit eingeführt und die nichtlinearen Mechanismen aufgezeigt, die in Bauelementen auf der Basis von SrTiO_3 -Filmen eine wichtige Rolle spielen können.

In Kapitel 3 werden die Präparation, die Strukturierung sowie die Charakterisierungsmethoden der SrTiO_3 -Schichten und die hierzu benötigten Anlagen und Messaufbauten vorgestellt und erläutert.

In Kapitel 4 werden die im Rahmen dieser Arbeit erzielten Resultate präsentiert und diskutiert. Dabei wird zunächst auf die strukturellen und dielektrischen Eigenschaften der SrTiO_3 -Schichten eingegangen. Die Eigenschaften werden analysiert, mögliche Korrelationen

zwischen den verschiedenen Eigenschaften werden aufgezeigt und auf der Basis eines theoretischen Modells erklärt. Im Anschluss daran werden die Ergebnisse der Messungen der nichtlinearen Mikrowelleneigenschaften der SrTiO_3 -Schichten vorgestellt und im Rahmen der strukturellen und dielektrischen Eigenschaften der Filme diskutiert. Im letzten Abschnitt des Kapitels wird dann die Integration der SrTiO_3 -Schichten in Teststrukturen (Varaktoren) unterschiedlichen Designs demonstriert und ein Vergleich der Geometrien durchgeführt. Hierbei wird insbesondere ein Modell entwickelt, das die dielektrischen Eigenschaften der unterschiedlichen Geometrien beschreibt, und es wird demonstriert, dass eine Optimierung des Designs zu signifikanten Verbesserungen der Bauelementeigenschaften führt.

Das Kapitel 5 enthält eine Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse der Arbeit sowie einen kurzen Ausblick.

2 Grundlagen

In diesem Kapitel sollen die wissenschaftlichen Grundlagen aufgezeigt werden, die als Basis für diese Arbeit dienen werden. Zu diesem Zweck wird in Kapitel 2.1 zunächst ein kurzer Überblick über die unterschiedlichen Eigenschaften verschiedener Materialien in elektromagnetischen Feldern gegeben. In Kapitel 2.2 wird dann die Dielektrizität als wichtige Eigenschaft von Materialien erläutert. Dabei werden zwei für die Arbeit wichtige elektrische Parameter eingeführt, die Dielektrizitätskonstante und der Verlusttangens. Anschließend wird in Kapitel 2.3 das Phänomen der Ferroelektrizität diskutiert und erklärt, um dann in Kapitel 2.4 näher auf die speziellen Eigenschaften der BaTiO_3 -Gruppe der Ferroelektrika einzugehen, der auch das im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Strontiumtitanat (SrTiO_3) angehört. In Kapitel 2.5 wird dann eine Betrachtung der Eigenschaften dünner ferroelektrischer SrTiO_3 -Schichten angestellt, hierbei werden insbesondere die Unterschiede zwischen den dünnen Schichten und den ferroelektrischen SrTiO_3 -Einkristallen herausgearbeitet. Abschließend wird in Kapitel 2.6 der mögliche Einsatz ferroelektrischer SrTiO_3 -Schichten als abstimmbare Bauteile in Hochfrequenzbauelementen diskutiert. Dabei wird zunächst der Begriff der Abstimmbarkeit von Kapazitäten und Bauelementen auf der Basis ferroelektrischer Schichten erläutert und ein Qualitätsfaktor für den Einsatz derartiger abstimmbarer Kapazitäten in Hochfrequenzanwendungen eingeführt. Zuletzt wird auf mögliche Probleme bei der Integration ferroelektrischer Schichten in Hochfrequenzbauelemente eingegangen, da aufgrund der nichtlinearen dielektrischen Eigenschaften der Filme im Bereich der Mikrowellenanwendungen besonders mit dem Auftreten von Intermodulationsstörungen gerechnet werden muss.

2.1 Materie in elektromagnetischen Feldern

Alle Stoffe lassen sich bezüglich ihrer elektrischen Eigenschaften einteilen in *Dielektrika* und *elektrische Leiter*: Dielektrika werden von elektrischen Feldern durchdrungen, in Leitern schirmt die hohe Dichte frei beweglicher Ladungsträger diese Felder ab. In dieser auf M. Faraday zurückgehenden Klassifizierung der Stoffe ist der Begriff Dielektrikum gleichbedeutend mit Isolator. Zu den Leitern, d. h. Stoffen guter Gleichstromleitfähigkeit, zählen vor allem Metalle und Plasmen.

Eine andere, besonders für die Praxis sehr hilfreiche Einteilung orientiert sich daran, ob die den Stoff aufbauenden Atome oder Moleküle ein permanentes elektrisches Dipolmoment besitzen oder nicht. Besitzen sie ein Dipolmoment, spricht man von *polaren Stoffen*. Die Gesamtpolarisation dieser Stoffe ist ohne äußeres elektrisches Feld im allgemeinen Null, da sich die elementaren Dipole im Raum über alle Richtungen gleich verteilen. Mit steigender Feldstärke bewirkt sogenannte Orientierungspolarisation eine zunehmende Ausrichtung der elementaren Dipole in Feldrichtung, das heißt die Polarisation des Mediums steigt, es tritt eine Feldverstärkung auf. Sie ist stark temperaturabhängig, da die thermische Bewegung der Atome/Moleküle der Ausrichtung entgegenwirkt. Man nennt diese Stoffe *paraelektrisch*.

Einige wenige Stoffe weisen auch im Nullfeld eine elektrische Polarisierung auf, sie sind spontan polarisiert. In Analogie zu den Ferromagnetika werden spontan elektrisch polarisierte Stoffe *Ferroelektrika* genannt. Ferroelektrika zeigen bei Feldvariation üblicherweise hysteretisches Verhalten und sind kristallin anisotrop aufgebaut. Spontane Polarisierung ist ein kollektiver Effekt, d.h. zu ihrer Ausprägung tragen Bereiche des Kristallites bei, die erheblich größer als seine Elementarzelle sind. Bei Miniaturisierung in den sub-nm-Bereich ist daher mit spontaner Polarisierung nicht zu rechnen – weder elektrisch noch magnetisch.

Auch unpolare Stoffe (*Dielektrika*) sind in elektrischen Feldern polarisierbar. Bei dieser sogenannten Verschiebungspolarisierung kommt es zu einer Verschiebung der positiven und negativen Ladungsschwerpunkte der mikroskopischen Bausteine des Stoffes. Diese Trennung der Ladungsschwerpunkte kann ionischer oder elektronischer Natur sein. Zwar ist die elektronische Verschiebungspolarisierung im allgemeinen klein gegenüber den gegebenenfalls vorhandenen ionischen Verschiebungen oder Rotationen, jedoch ist sie in allen Stoffen vorhanden und wegen der geringen Elektronenmasse sehr viel schneller, so dass sie bei hohen Frequenzen ($> 10^{14}$ Hz) selbst bei polaren Stoffen dominant wird.

Im Folgenden soll näher auf die beiden Verhaltensweisen isolierender Materie in elektromagnetischen Feldern genauer eingegangen werden, der *Dielektrizität* (Kapitel 2.2) sowie der *Ferroelektrizität* (Kapitel 2.3).

2.2 Dielektrizität

In diesem Kapitel werden zwei Begriffe aus der Elektrodynamik, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit eine wichtige Rolle spielen, kurz erklärt, die Dielektrizitätskonstante ϵ und die dielektrischen Verluste, definiert über ihren Verlusttangens $\tan\delta$.

Jedes Material besitzt auf atomarer Skala Ladungen, aus denen die atomaren Teilchen bestehen (Kerne, Elektronen, Ionenrümpfe). Diese sind nicht starr, sondern in erster Näherung elastisch verbunden und damit beweglich. Zusätzlich zu diesen Ladungsträgern besitzen manche atomaren Teilchen und Moleküle infolge ihres Aufbaus auch im feldfreien Raum schon ein Dipolmoment. Ein Material mit solchen beweglichen Ladungen und Momenten nennt man *Dielektrikum*.

Bringt man ein *Dielektrikum* in ein elektrisches Feld, so wird dieses Feld geschwächt, da sich die elektrischen Dipole im *Dielektrikum*, die normalerweise zufällig orientiert sind, durch das Feld ausrichten. Die Schwächung des elektrischen Feldes ist dadurch zu erklären, dass die Polarisierung der ausgerichteten Dipole dem angelegten Feld entgegengerichtet ist. In welchem Maße sich die Dipole ausrichten, hängt von der äußeren Feldstärke, der Temperatur und den dielektrischen Eigenschaften des *Dielektrikums* ab. Die thermische Bewegung wirkt einer festen Ausrichtung der Dipole entgegen.

Die Wechselwirkung zwischen einem elektromagnetischen Feld und Materie wird allgemein beschrieben durch die Maxwell-Gleichungen [Jack83]:

$$(Gl. 1) \quad \nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$$

$$(Gl. 2) \quad \nabla \times \vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$$

$$(Gl. 3) \quad \nabla \cdot \vec{D} = 0$$

$$(Gl. 4) \quad \nabla \cdot \vec{B} = 0$$

Dabei bezeichnet $\vec{E}$ die elektrische Feldstärke und $\vec{D}$ die dielektrische Verschiebung, $\vec{H}$ die magnetische Feldstärke, $\vec{B}$ die magnetische Flussdichte und $\vec{j}$ die Stromdichte. Zusätzlich benötigt man zur vollständigen Beschreibung der Wechselwirkung die Materialgleichungen:

$$(Gl. 5) \quad \vec{D} = \epsilon_0 \epsilon' \vec{E}$$

$$(Gl. 6) \quad \vec{B} = \mu_0 \mu_r \vec{H}$$

$$(Gl. 7) \quad \vec{j} = \sigma \vec{E}$$

Hierbei ist σ die Leitfähigkeit des Materials. Den Faktor ϵ' nennt man die Dielektrizitätszahl des Materials. Multipliziert man sie mit der elektrischen Feldkonstante $\epsilon_0 = 8,854 \cdot 10^{-12} \text{Coulomb}^2 \cdot \text{N}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$, so erhält man die Permittivität ϵ_r des Materials:

$$(Gl. 8) \quad \epsilon_r = \epsilon_0 \cdot \epsilon'$$

Der Einfluss eines hochfrequenten Wechselfeldes lässt sich durch zeitlich harmonisch variierende Felder beschreiben, z.B. für das elektrische Feld:

$$(Gl. 9) \quad \vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r}) e^{i\omega t}$$

Dabei bezeichnet $\vec{r}$ den Ortsvektor, ω die Kreisfrequenz, die sich aus der Frequenz f gemäß $\omega = 2\pi f$ ableitet und t die Zeit. Betrachtet man für diesen Fall (Gl. 2) und setzt die Materialgleichungen (Gl. 5) und (Gl. 7) ein, so erhält man

$$(Gl. 10) \quad \nabla \times \vec{H} = \sigma \cdot \vec{E} + i\omega \epsilon_0 \epsilon' \vec{E}$$

An diesem Ausdruck ist ersichtlich, dass sich ein Material mit einer reellen Leitfähigkeit σ und einer reellen Dielektrizitätszahl ϵ' auch stattdessen allein durch eine komplexe Dielektrizitätszahl

$$(Gl. 11) \quad \epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$$

beschreiben lässt, deren Imaginärteil dann die Form

$$(Gl. 12) \quad \epsilon'' = \frac{\sigma}{\omega \epsilon_0}$$

annimmt. Der Imaginärteil von ϵ beschreibt dann die Verluste im Dielektrikum aufgrund von freien Ladungsträgern. Anstelle von ϵ'' ist es üblich, den Verlusttangens

$$(Gl. 13) \quad \tan \delta = \left| \frac{\epsilon''}{\epsilon'} \right| = \frac{\sigma}{\omega \epsilon_0 \epsilon'}$$

als Materialgröße zur Beschreibung der Hochfrequenzverluste zu benutzen.

Es ist nicht immer davon auszugehen, dass die Dielektrizitätskonstante durch eine einfache komplexe Zahl dargestellt werden kann. Vielmehr muss sie im Falle anisotroper dielektrischer Eigenschaften, wie sie z.B. für Einkristalle mit niedrig symmetrischen Raumgruppen zu erwarten sind, durch einen Tensor 2. Stufe beschrieben werden. Allgemein gilt dann:

$$(Gl. 14) \quad \epsilon_{\alpha\beta} = \epsilon'_{\alpha\beta} + i\epsilon''_{\alpha\beta},$$

wobei α und β die unterschiedlichen Ausrichtungen des Feldes im Kristall symbolisieren.

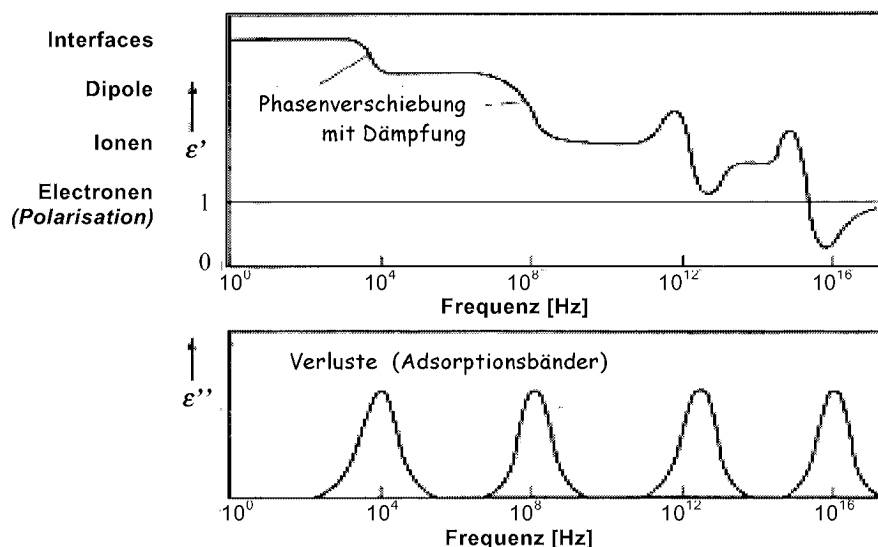


Abb. 2 Schematische Darstellung der Frequenzabhängigkeit der komplexen Dielektrizitätskonstante $\epsilon' + i\epsilon''$. Es ist jeweils nur eine Relaxationsfrequenz für Interfaces, Dipolorientierung, eine Resonanzfrequenz für optische Gitterschwingungen und eine elektronische Resonanzfrequenz gezeichnet [IFF95].

Abb. 2 zeigt den schematischen, idealisierten Frequenzgang der komplexen Dielektrizitätskonstante $\epsilon' + i\epsilon''$. Bei der Frequenz $f = 0$ hat der Realteil der Dielektrizitätskonstante naturgemäß seinen maximalen Wert. Der erste Abfall liegt im Bereich der typischen Relaxationszeit von Oberflächenzuständen. Weitere Abnahmen zeigen dann die Frequenzbegrenzung der typischen Relaxationszeiten permanenter Dipole, der Ionenfrequenzen und schließlich der elektronischen Frequenzen. Der Imaginärteil beschreibt die Absorption der eingestrahlten Frequenz. Diese wird im Bereich der unterschiedlichen Resonanzen des Materials maximal.

2.3 Ferroelektrizität

Ferroelektrische Materialien zeichnen sich in einem angelegten elektrischen Feld durch ein Verhalten aus, dass in gewisser Weise dem der Ferromagnetika im magnetischen Feld ähnelt: Legt man ein äußeres elektrisches Feld $\vec{E}$ an ein *Ferroelektrikum* an und trägt die Polarisierung des Materials, die gegeben ist durch:

$$(Gl. 15) \quad \vec{P} = (\epsilon - 1)\epsilon_0 \vec{E},$$

als Funktion des Feldes auf, so erhält man unterhalb einer materialspezifischen Temperatur T_C („Curie-Temperatur“) einen hysteretischen Verlauf, wie man ihn für die Magnetisierung ferromagnetischer Stoffe in äußeren Magnetfeldern kennt. Eine solche Hysterese-Kurve für $T < T_C$ ist in Abb. 3 schematisch dargestellt.

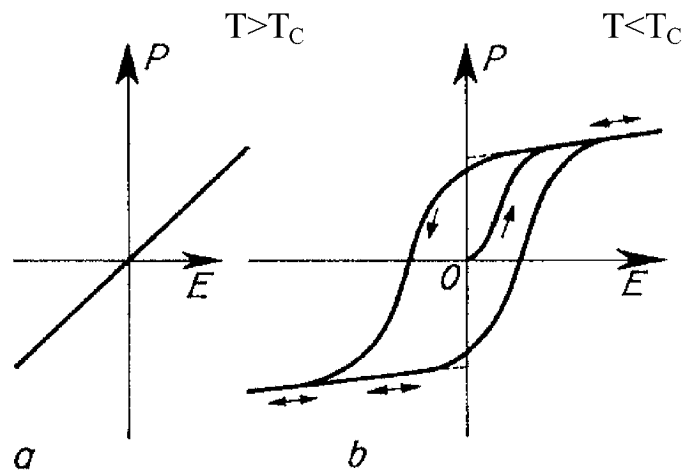


Abb. 3 Schematischer Verlauf der Polarisation eines Ferroelektrikums als Funktion eines externen elektromagnetischen Feldes: (a) oberhalb der Curie-Temperatur T_C (b) unterhalb der Curie-Temperatur T_C des Materials.

Dass die Polarisation eines Materials wie in Abb. 3 (a) im Falle $T < T_C$ einem äußeren elektrischen Feld linear folgt, entspricht dem Verhalten dielektrischer Materialien. In einem dielektrischen Material verschieben sich die vorhandenen Ladungen (Elektronen, Ionen, permanente Dipole) entsprechend des auf sie einwirkenden elektrischen Feldes, das Material wird polarisiert.

Für das Verständnis der Ferroelektrika ist es wichtig zu berücksichtigen, dass nicht nur das von außen angelegte elektrische Feld $\vec{E}_0$ eine Verschiebung von Ladungsträgern bewirken kann. Vielmehr wirken auf die verschiebbaren Ladungen (Ionen) im Dielektrikum auch die dem angelegten Feld überlagerten elektrischen Felder der Dipole der Nachbarmoleküle $\vec{E}^{Dip}$, die als das „lokale Feld“ zusammengefasst werden:

$$(Gl. 16) \quad \vec{E}^{lok} = \vec{E}_0 + \sum_i \vec{E}_i^{Dip}.$$

Dieses „lokale Feld“ wird nun bei ferroelektrischen Materialien mit abnehmender Temperatur so groß, dass unterhalb einer bestimmten Temperatur ohne ein äußeres Feld eine spontane Polarisation des Stoffes von selbst eintritt. Das lokale Feld wird so stark, dass die Bindungskräfte zu den nächsten Nachbarn kleiner sind als die durch das lokale Feld hervorgerufenen Kräfte. Daher wird das Ion aus seiner bisherigen Position ausgelenkt, bis es sich in einer neuen Gleichgewichtslage befindet. Hierdurch tritt wiederum eine Verschiebung benachbarter Ladungsträger auf, so dass sich die gesamte Struktur des Ferroelektrikums neu ordnet. Diese Ordnung findet allerdings gleichzeitig an vielen verschiedenen Stellen des Materials statt. Daher ist der Kristall unterhalb seiner Curie-Temperatur zwar überall polarisiert, die Polarisation nimmt jedoch in verschiedenen Kristallbereichen unterschiedliche Richtungen ein. Es kommt somit wie bei den ferromagnetischen Materialien zur Bildung von einzelnen Domänen.

Im Rahmen dieses Bildes lässt sich erklären, wie es zum hysteretischen Verhalten der Polarisation unterhalb der Curie-Temperatur kommt. Im äußeren Feld wachsen zunächst die in Richtung des äußeren Feldes polarisierten Domänen, dann klappen nach und nach die ungünstig zur Polarisationsrichtung gelegenen Domänen um, und schließlich tritt bis zum Erreichen der Sättigung eine Drehung des inneren elektrischen Feldvektors in Richtung des von außen angelegten Feldes ein. Bei Verringerung bzw. Abschalten des Feldes gehen nicht alle umgeklappten Bereiche in ihre ursprüngliche Lage zurück, es tritt Remanenz und somit auch eine elektrische Hysterese auf, wie sie Abb. 3 (b) schematisch zeigt.

Oberhalb der Curie-Temperatur folgt die Dielektrizitätskonstante des Ferroelektrikums reversibel dem Curie-Weiß-Gesetz:

$$(Gl. 17) \quad \epsilon = \frac{A}{T - T_C}$$

(wobei T_C die Curie-Weiß-Temperatur ist und A der materialspezifischen Curiekonstanten entspricht). Die Permittivität ϵ fällt in diesem Temperaturbereich mit zunehmender Temperatur stark ab, bleibt aber je nach Material mit typischen Werten von $\epsilon \approx 100 - 1000$ immer noch recht hoch.

Eine thermodynamische Beschreibung des ferroelektrischen Phasenübergangs bietet die Ginzburg-Landau-Theorie (siehe zum Beispiel [Wase03]). Sie führt einen Ordnungsparameter – im unserem Fall die Polarisation P – ein, welcher für einen Phasenübergang zweiter Ordnung bei der Phasenübergangstemperatur T_C kontinuierlich gegen Null strebt. Daher kann die freie Energie des Ferroelektrikums in der Nähe des Phasenübergangs in einer Potenzreihe des Ordnungsparameters P entwickelt werden:

$$(Gl. 18) \quad F(P, T) = \int dV \left[\frac{1}{2} g_2 P^2 + \frac{1}{4} g_4 P^4 + \frac{1}{6} g_6 P^6 + \frac{1}{2} \delta (\nabla P)^2 - \frac{1}{2} P E \right].$$

Dabei ist F die freie Energie, E das elektrische Feld und die Faktoren g_2 , g_4 und g_6 temperaturabhängige Konstanten. Bei der Entwicklung von P in einer Potenzreihe wurden aufgrund der Symmetrie nur gerade Potenzen berücksichtigt.

Vernachlässigt man zunächst den Gradiententerm $(\nabla P)^2$ und betrachtet das Ferroelektrikum ohne äußeres Feld E , vereinfacht sich die Gleichung zu:

$$(Gl. 19) \quad F(P, T) = \frac{1}{2} g_2 P^2 + \frac{1}{4} g_4 P^4 + \frac{1}{6} g_6 P^6.$$

Stabile Zustände werden erreicht für Minima in der freien Energie, für die gilt:

$$(Gl. 20) \quad \frac{\partial F}{\partial P} = 0 = P(g_2 + g_4 P^2 + g_6 P^4)$$

$$(Gl. 21) \quad \frac{\partial^2 F}{\partial P^2} = \frac{1}{\chi} = g_2 + 3g_4 P^2 + 5g_6 P^4 > 0.$$

Dabei ist χ die Suszeptibilität des Materials. Sie ist mit der Dielektrizitätskonstante in folgender Weise verknüpft:

$$(Gl. 22) \quad \chi = \frac{1}{\epsilon - 1}.$$

Hieraus folgt, dass in der paraelektrischen Phase, in der keine spontane Polarisation stattfindet ($P = 0$), für die Erfüllung von (Gl. 21) gelten muss:

$$(Gl. 23) \quad g_2 > 0$$

Aus dem Curie-Weiss-Gesetz (Gl. 17) folgt unter der Annahme $\epsilon \gg 1$ des weiteren:

$$(Gl. 24) \quad g_2 = \frac{1}{\chi} \approx \epsilon = \frac{T - T_C}{A}.$$

Im Falle eines Phasenübergangs zweiter Ordnung muss außerdem $g_4 > 0$ gelten. Bei Vernachlässigung von g_6 ergibt sich für ein Minimum der freien Energie in der ferroelektrischen Phase:

$$(Gl. 25) \quad \frac{\partial F}{\partial P} = 0 = P \left(\frac{T - T_C}{A} + g_4 P^2 \right)$$

mit den Lösungen:

$$(Gl. 26) \quad P = 0 \quad \text{und}$$

$$(Gl. 27) \quad P_s^2 = -\frac{T - T_C}{g_4 A}.$$

Für $T < T_C$ existiert eine Lösung für (Gl. 25) in Form einer spontanen Polarisation für das Ferroelektrikum der Größe:

$$(Gl. 28) \quad P_s = \sqrt{\frac{T_C - T}{A g_4}}.$$

Die hergeleitete freie Energie $F(P)$ eines Ferroelektrikums mit einem Phasenübergang zweiter Ordnung ist in Abb. 4 schematisch gezeigt. Dabei sind die drei verschiedenen Fälle ($T > T_C$, T

= T_C sowie $T < T_C$) dargestellt. Die Minima der Kurve für $F(P, T < T_C)$ ergeben die spontane Polarisation $-P_S$ und P_S des Materials.

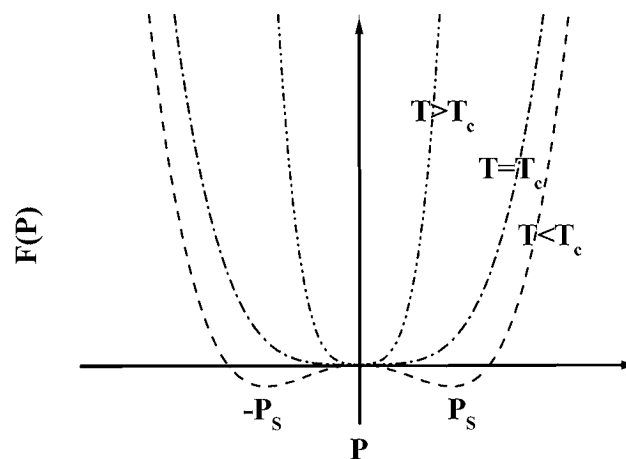


Abb. 4 Freie Energie eines Ferroelektrikums mit einem Phasenübergang zweiter Ordnung für verschiedene Temperaturbereiche. Unterhalb von T_C kommt es zu einer spontanen Polarisation.

2.4 Ferroelektrika des BaTiO₃-Typs

Es existieren viele unterschiedliche Ansätze zur Klassifikation der Ferroelektrika nach unterschiedlichen Kriterien, auf eine umfassende Beschreibung wird daher hier verzichtet. Im Folgenden soll aber die Gruppe der Ferroelektrika beschrieben werden, in der sich das in dieser Arbeit verwendete SrTiO₃ befindet, die Ferroelektrika des BaTiO₃-Typs.

2.4.1 Kristalline Eigenschaften

Die zum BaTiO₃-Typ zählenden Ferroelektrika sind in ihrer unpolarisierten Phase kubisch. Die meisten dieser Kristalle mit der generellen Molekülformel ABO₃ (A, B Kationen) haben eine „Perovskit“-Struktur.

Diese atomare Anordnung ist benannt nach dem Mineral, bei dem sie zuerst festgestellt wurde, dem CaTiO₃ (Perovskit). In dieser Anordnung liegt das Kation A zwischen zwölf Sauerstoffatomen und das Kation B zwischen sechs. Daher besitzt das Kation A normalerweise einen etwas größeren Atomradius als das Kation B. Abb. 5 zeigt die Kristallstruktur der Perowskite.

Durch die kubische Symmetrie bedingt treten mehrere gleichwertige Achsen auf, in deren Richtung die spontane Polarisation stattfinden kann. Außerdem zeichnen sich die meisten Ferroelektrika dieses Typs durch mehrere Phasenübergänge aus, von denen der Übergang mit der höchsten Umwandlungstemperatur stets der Umwandlung vom unpolarisierten (dielektrischen) zum polarisierten (ferroelektrischen) Zustand entspricht, während bei den

tieferen Umwandlungstemperaturen eine Umordnung der Kristallstruktur und damit der Polarisierungsrichtungen stattfindet.

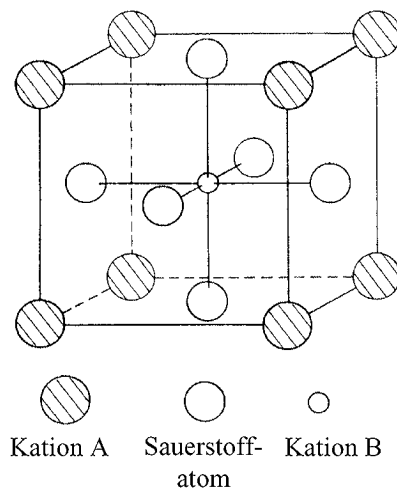


Abb. 5 Schematische Darstellung der Perowskit-Struktur, ABO_3 .

Einen Vergleich der Curie-Temperatur einiger Ferroelektrika aus der Gruppe der Perowskite zeigt Abb. 6.

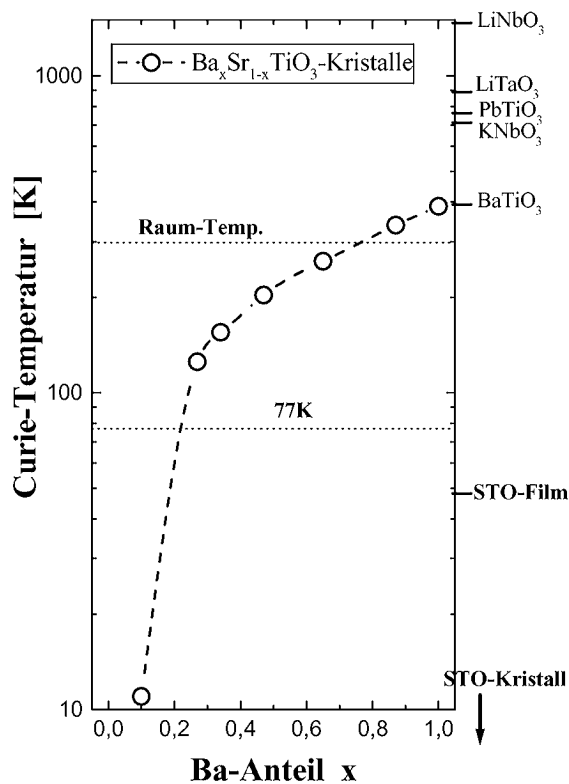


Abb. 6 Vergleich der Curie-Temperatur T_C unterschiedlicher Perowskite, Einkristalle, Polykristalle und $SrTiO_3$ -Schichten.

Abb. 7 zeigt als Beispiel die Dielektrizitätskonstante des BaTiO_3 -Einkristalls als Funktion der Temperatur. Im gewählten Temperaturbereich von $70\text{K} \leq T \leq 430\text{K}$ finden drei Phasenübergänge statt, die mit Übergängen in der Kristallstruktur verbunden sind. Unterhalb der Curie-Temperatur ($T_C \sim 390\text{K}$) spaltet die Dielektrizitätskonstante aufgrund der Reduktion der Kristallsymmetrie (Übergang von der kubischen zur tetragonalen Kristallstruktur) in zwei unterschiedliche Zweige auf. Derartige Strukturvariationen können auch durch andere Einflüsse, zum Beispiel induzierte Verspannungen bei Schichten, erzeugt werden.

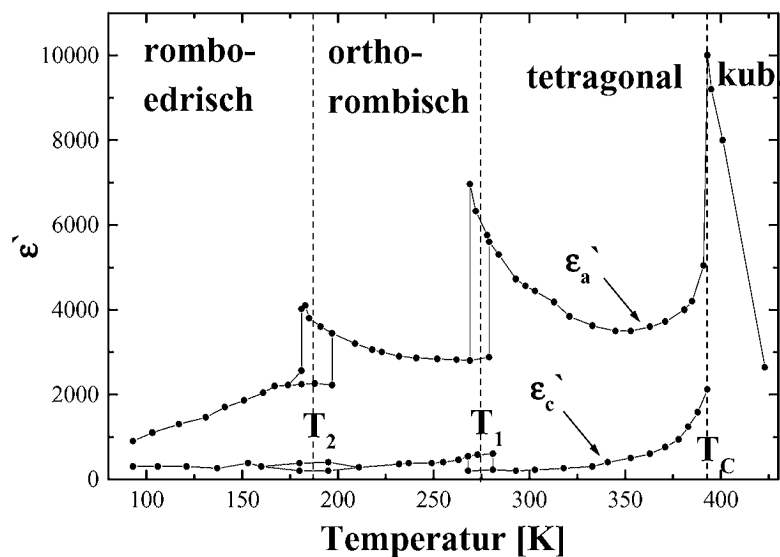


Abb. 7 Phasenübergänge des BaTiO_3 -Einkristalls.

2.4.2 Strontiumtitanat

Lange Zeit war heftig umstritten, ob Strontiumtitanat (SrTiO_3) aufgrund seiner dem Bariumtitanat (BaTiO_3) gleichenden Perovskitstruktur (kubischer Perovskit mit der Gitterkonstanten $a = 3.902\text{\AA}$, $A = \text{Sr}$ und $B = \text{Ti}$, siehe Abb. 5) ebenfalls einen ferroelektrischen Phasenübergang besitzen müsse. Zwar entspricht die Temperaturabhängigkeit der Permittivität ϵ dem Curie-Weiss-Verhalten aus (Gl. 17). Allerdings erhält man aus der Extrapolation der experimentell bestimmten Temperaturabhängigkeit von ϵ gemäß dem Curie-Weiss-Gesetz eine Curie-Temperatur in der Nähe des absoluten Nullpunktes. Somit war es bisher nicht möglich, einen experimentellen Beweis des ferroelektrischen Verhaltens (hysteretische Polarisationskurve unterhalb der Phasenübergangstemperatur θ) zu führen. Man geht heute allgemein von einer negativen Phasenübergangstemperatur unterhalb von $T = 0\text{K}$ aus. SrTiO_3 wird daher auch als ein „beginnendes Ferroelektrikum“ („incipient ferroelectric“) bezeichnet, dessen dielektrische wie kristallografische Eigenschaften den Ansatz zu einem Phasenübergang besitzen, ihn jedoch auch bei tiefsten Temperaturen nicht überschreiten.

Bei Raumtemperatur beträgt die Dielektrizitätskonstante reiner SrTiO_3 -Einkristalle etwa $\epsilon \approx 250 - 400$ und erreicht bei der Temperatur des flüssigen Heliums ($T \approx 4,2\text{K}$) einen Wert von $\epsilon > 20000$. Für SrTiO_3 (wie für andere Ferroelektrika) typisch ist die stark nichtlineare Abhängigkeit der Dielektrizitätskonstanten von einem äußeren elektrischen Feld in der Nähe der Curie-Temperatur. Abb. 8 zeigt die temperaturabhängige Messung der Dielektrizitätskonstanten ϵ eines SrTiO_3 -Einkristalls sowie die inverse Dielektrizitätskonstante $1/\epsilon$. Diese folgt dem in (Gl. 17) enthaltenen Curie-Weiss-Gesetz bei Temperaturen von $T > 40\text{K}$. Man erhält eine Curie-Temperatur $T_C \approx 25\text{K}$. Ein Phasenübergang kann jedoch nicht beobachtet werden.

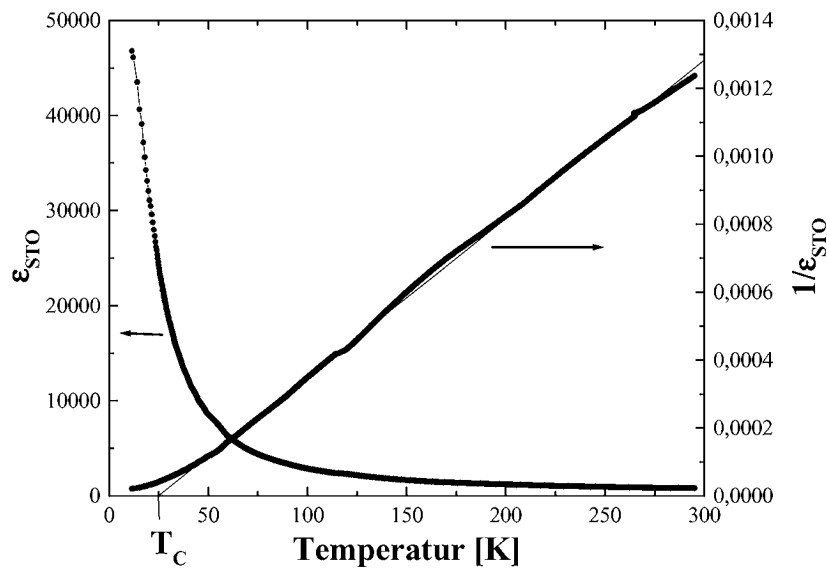


Abb. 8 Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} sowie inverse Dielektrizitätskonstante $1/\epsilon_{\text{STO}}$ eines SrTiO_3 -Einkristalls in Abhängigkeit der Temperatur. Der Fit der inversen Dielektrizitätskonstante nach dem Curie-Weiss-Gesetz aus (Gl. 17) ergibt eine Curie-Temperatur von $T_C \approx 25\text{K}$. Ein Phasenübergang wird nicht beobachtet.

2.5 SrTiO_3 -Filme

Im Vergleich zu den SrTiO_3 -Einkristallen (siehe Kapitel 2.4.2) spielen bei den dünnen SrTiO_3 -Schichten eine Reihe von zusätzlichen Faktoren eine Rolle, die die elektrischen Eigenschaften des Materials (u.a. Dielektrizitätskonstante, Polarisierbarkeit und dielektrische Verluste) beeinflussen. Der tatsächliche Einfluss der einzelnen Zusatzfaktoren, wie der des Sauerstoffgehaltes der Schicht, der Schichtdefekte, der Spannungen in der Schicht, Kornbildung (und damit auch Korngrenzen), Schichtrauigkeit sowie der Schichtdicke ist bisher nicht vollständig untersucht worden. Es kann jedoch mit Sicherheit konstatiert werden, dass sich die dielektrischen Eigenschaften der Filme teilweise sehr stark von denen der Einkristalle desselben Materials unterscheiden. So erreicht die Dielektrizitätskonstante eines

SrTiO₃-Films bei weitem nicht den maximalen Wert von SrTiO₃-Einkristallen ($\epsilon > 20000$). Vereinzelt wird in der Literatur von Werten bis zu $\epsilon_{\max} \approx 5000 - 8000$ berichtet [Lipp99] [Fuch99], üblicherweise erreichen SrTiO₃-Filme jedoch $\epsilon_{\max}$ -Werte zwischen einigen hundert und 1500.

Weiterhin zeichnen sich die Filme im Gegensatz zu den Einkristallen nicht durch einen stetigen Anstieg der Dielektrizitätskonstanten bei Temperaturabsenkung bis zu $T = 0\text{K}$ aus, sondern weisen ein filmspezifisches Maximum im Temperaturbereich von $T = 40\text{K} - 100\text{K}$ auf, unterhalb dessen die Dielektrizitätskonstante stark abfällt (siehe Abb. 9 (a)). Unterschiedliche Ursachen für den Mechanismus, der für diesen Abfall verantwortlich ist, werden zur Zeit in der Literatur diskutiert.

Weiterhin ergeben sich für die dielektrischen Verluste in SrTiO₃-Filmen Werte, die mit Werten im Bereich von $\tan\delta \approx 0,01$ und somit um etwa eine Größenordnung über denen der SrTiO₃-Einkristalle liegen (siehe Abb. 9 (b)). Auch hier scheinen die zusätzlich auftretenden Dünnschichtfaktoren eine Rolle zu spielen. Im Folgenden soll ihr möglicher Einfluss daher kurz diskutiert werden.

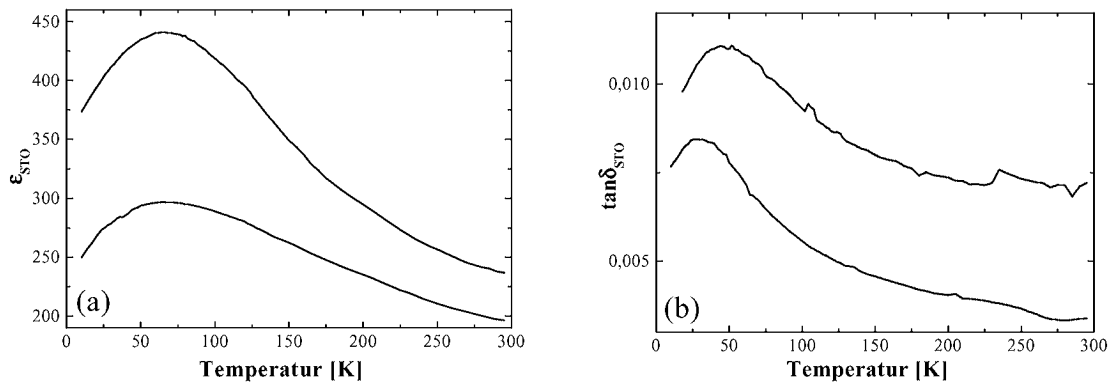


Abb. 9 Typische Temperaturabhängigkeit (a) der Dielektrizitätskonstanten ϵ sowie (b) des Verlusts $\tan\delta$ von zwei dünnen SrTiO₃-Schichten.

2.5.1 Einfluss von Stöchiometrie und Defekten

Als wesentlicher Faktor für die dielektrischen Eigenschaften, insbesondere die Verluste, dünner SrTiO₃-Filme wird der Sauerstoffanteil diskutiert. Dabei scheint es im Hinblick auf möglichst niedrige dielektrische Verluste in der Schicht wichtig zu sein, der 1:1:3-Stöchiometrie des Perovskits möglichst nahe zu kommen. Der Grund hierfür liegt in den sonst auftretenden Sauerstofffehlstellen, deren hohe Beweglichkeit zu einer erhöhten Leitfähigkeit σ der Filme und damit gemäß (Gl. 13) zu einer Erhöhung der Verluste führt [Zafa98]:

$$(Gl. 13) \quad \tan\delta = \frac{\sigma}{\omega\epsilon_0\epsilon'}$$

Zusätzlich zur Sauerstoffeinstellung der Filme während des Depositionsprozesses kann gegebenenfalls auch eine nachträgliche Beladung des SrTiO₃-Films mit Sauerstoffatomen bei

hohen Temperaturen helfen, die dielektrischen Verluste zu verringern und die Dielektrizitätskonstante zu erhöhen [Bouz02]. Die dazu notwendigen Tempervorgänge im Sauerstoff bei sehr hohen Temperaturen von $T = 1000^{\circ}\text{C} - 1400^{\circ}\text{C}$ haben allerdings auch morphologische Änderungen der Schicht und gegebenenfalls chemische Prozesse an der Grenzschicht zwischen Film und Substrat zur Folge. Auch werden mittlerweile chemische Prozesse (z. B. chemische Interdiffusion von Schicht und Substrat am Interface) als Ursache für die Erhöhung der Verluste diskutiert. Nichtsdestotrotz scheint die Sauerstoffstöchiometrie entscheidend für die dielektrischen Eigenschaften der Schicht zu sein.

Des weiteren wird vermutet, dass die Wände der ferroelektrischen Domänen durch Defekte in der Schicht verankert werden. In einem äußeren elektrischen Feld wirkt dieses sogenannte Domänenwandpinning dem Wachstum von in Feldrichtung polarisierten Domänen und damit der Polarisierung der Schicht entgegen. Außerdem können einige dieser strukturellen Defekte Sauerstofffehlstellen oder quasi-freie Elektronen enthalten, die lokalisierte Dipole bilden. Diese wechselwirken mit der Polarisierung der umgebenden ferroelektrischen Domänen und erschweren so ein Drehen oder Umklappen der Polarisierungsrichtung der Domänen. Damit können Defekte in ferroelektrischen Filmen eine Ursache für eine geringere Polarisierbarkeit des Materials sein.

2.5.2 Körner und Korngrenzen

Im Gegensatz zu Einkristallen besitzen Filme zumeist eine durch mikrokristalline Bereiche und Korngrenzen charakterisierte Morphologie. Die Größe der kristallinen Bereiche und die Winkel der strukturellen Ausrichtung hängen vom Grad der epitaktischen Qualität der Filme ab.

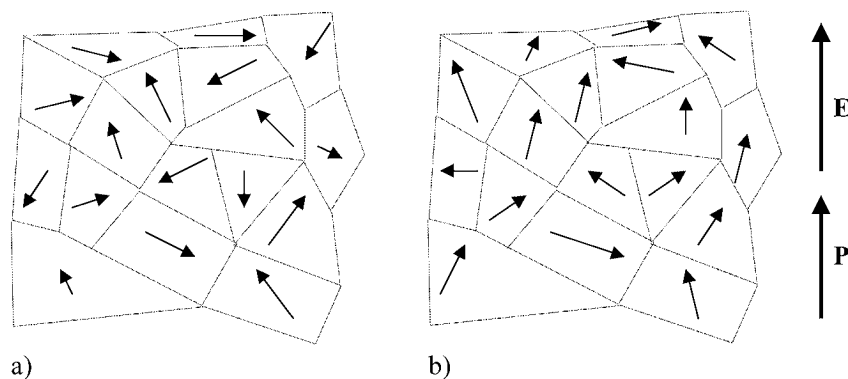


Abb. 10 Skizze einer polykristallinen ferroelektrischen Schicht (a) vor und (b) nach dem Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes. Durch die Morphologie und das Domänenpinning an Defekten ist die Polarisierung im Feld stark reduziert.

Jeder kristalline Bereich besitzt eine eigene kristallographische Orientierung, die gegenüber den Orientierungen der anderen Bereiche mehr oder minder verkippt ist. Dies hat zur Folge, dass selbst in einem starken äußeren elektrischen Feld viele Domänen und Domänenwände erhalten bleiben oder die Polarisierungsrichtung einzelner Domänen nur geringfügig geändert wird. Das hat zur Folge, dass die Polarisierbarkeit des Materials und somit auch die

Dielektrizitätskonstante ϵ stark reduziert ist. Abb. 10 zeigt eine idealisierte Skizze eines polykristallinen ferroelektrischen Films vor und nach seiner Polarisierung.

Weiterhin können Korngrenzen wie auch andere Grenzflächen ein besonders hohes Defizit an Sauerstoffatomen aufweisen, was zu einer erhöhten Konzentration freier Ladungsträger an den Korngrenzen führt. Durch diese Aufladung der Korngrenzen können sowohl die Dielektrizitätskonstante des Films reduziert als auch die Verluste erhöht werden [Vend00].

Des weiteren können Korngrenzen in der Schicht eine Verschiebung der Curie-Temperatur des Materials hervorrufen, die Ordnung und Schärfe des Phasenübergangs ändern oder sogar neue Phasen hinzufügen [Damj98].

2.5.3 Einfluss von Schichtrauigkeit, Schichtdicke und Grenzschichten

Legt man einen nicht perfekt glatten ferroelektrischen Film zugrunde, so ist davon auszugehen, dass Domänenwände ebenfalls von den Unebenheiten der Filmoberfläche gepinnt werden. Dies kann sowohl der Polarisierung des Films in einem äußeren elektrischen Feld entgegenwirken als auch eine Erhöhung der Remanenz zur Folge haben kann. Die Verankerung von Domänenwänden an Unebenheiten des Films spielt besonders bei extrem dünnen Filmen eine Rolle und nimmt mit zunehmender Schichtdicke ab [Damj98b]. Bei sehr dünnen Filmen ($h_{\text{Film}} < 50\text{nm}$) kann die Schichtdicke selbst einen die Dielektrizitätskonstante mindernden Einfluss haben [Zemb02]. Für die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten SrTiO_3 -Filme (typische Schichtdicke $h_{\text{STO}} > 400\text{ nm}$) spielt dieser Effekt allerdings keine Rolle.

Besonders kritisch hinsichtlich der dielektrischen Eigenschaften dünner SrTiO_3 -Filme sind die Grenzschichten zwischen SrTiO_3 -Film und den anderen Komponenten eines Mehrschichtsystems (z. B. einer Pufferschicht zwischen Substrat und Film oder einem normalleitenden bzw. supraleitenden Elektrodenmaterial). Ein störender Einfluss kann hier eine zusätzliche Ladungsträgerinjektion durch das leitende Material sein, der zu einer erhöhten Leitfähigkeit und damit höheren Verlusten führen kann [Vend01]. Weiterhin können angrenzende Schichten eine höhere Sauerstoffaffinität aufweisen als das SrTiO_3 selbst und damit der ferroelektrischen Schicht einen Teil ihrer Sauerstoffionen entziehen, was wiederum zu erhöhten Verlusten aufgrund von Sauerstofffehlstellen führt (siehe Kapitel 2.5.1).

2.6 Abstimmbarkeit und nichtlineares Verhalten von Ferroelektrika

In diesem Kapitel soll zum einen auf die Vorteile der Dünnschichtferroelektrika eingegangen werden, insbesondere die Abstimmbarkeit der Permittivität, die einen Einsatz dieser Systeme in Hochfrequenzbauelementen (z. B. Resonatoren [Galt93], Filter [Find96], Phasenschieber [Kozy01], superdirektive Antennen etc.) erlauben und daher das gesteigerte Interesse an diesen Materialien in Dünnschichtform begründen. Dabei wird zunächst der Effekt der Abstimmbarkeit der Dielektrizitätskonstanten der ferroelektrischen Dünnschichten diskutiert und dann ein Qualitätsfaktor zur Beurteilung der Verwendbarkeit von abstimmbaren ferroelektrischen Bauelementen eingeführt. Zum anderen soll aber auch auf ein mögliches

Problem bei der Anwendung von Ferroelektrika in Hochfrequenzanwendung hingewiesen werden, die nichtlinearen Effekte und die daraus resultierenden Beeinträchtigungen möglicher Anwendungen, zum Beispiel in Form von Intermodulationsstörungen. Wir werden später in Kapitel 4 sehen, dass die nichtlinearen Eigenschaften der SrTiO_3 -Schichten keine ernstzunehmende Einschränkung der Anwendungsmöglichkeiten dieser Schichten darstellt. Im Gegenteil: die aufgeführten Messungen der Intermodulationsstörungen bieten eine weitere, ideale Möglichkeit der Charakterisierung und Analyse der für das ferroelektrische Verhalten dieser Systeme verantwortlichen Mechanismen.

2.6.1 Abstimmbarkeit der Dielektrizitätskonstanten

Die für mögliche Anwendungen vielleicht interessanteste Eigenschaft ferroelektrischer Materialien ist die große Polarisierbarkeit des Materials, die verbunden ist mit einer großen Änderung der Dielektrizitätskonstanten durch ein äußeres elektrisches Gleichspannungsfeld. Abb. 11 zeigt als einfaches Beispiel die Abstimmungskurve eines Resonators auf der Basis eines SrTiO_3 -Einkristalls als Funktion einer zusätzlich angelegten elektrischen Gleichspannung.

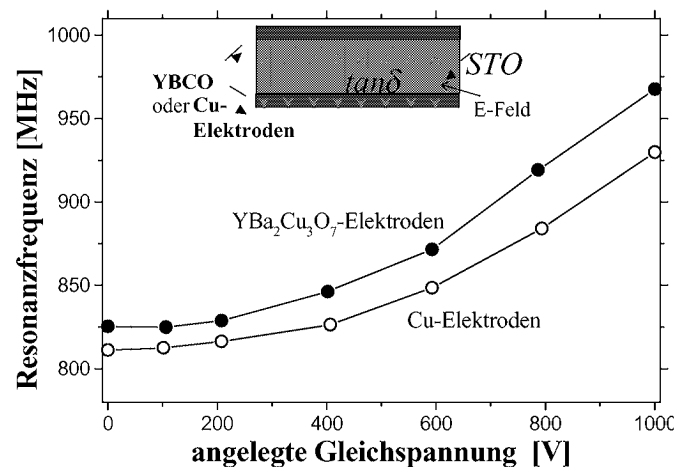


Abb. 11 Abstimmbarkeit eines SrTiO_3 -Einkristalls mit supraleitenden $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-8}$ bzw. Kupfer-Elektroden bei $T = 77\text{K}$. Der Aufbau der abstimmbaren Kapazität entspricht einer Sandwichanordnung (Elektrode/Einkristall/Elektrode mit einem 0.5mm dicken (100) - SrTiO_3 -Einkristall) und ist im Plot schematisch wiedergegeben.

Ferroelektrische Filme haben hinsichtlich ihrer Verwendbarkeit in Hochfrequenzbauelementen gegenüber den Einkristallen mehrere Vorteile. Zunächst einmal liegt das Maximum ihrer Dielektrizitätskonstanten ϵ sowie ihrer dielektrischen Abstimmbarkeit (siehe Abb. 6 in Kapitel 2.5) bei wesentlich höheren Temperaturen ($40 < T(\epsilon_{\max}) < 100$) als im Falle der SrTiO_3 -Einkristalle ($T(\epsilon_{\max}) < 4\text{K}$), so dass mögliche Anwendungen in einem leichter realisierbaren Temperaturbereich genutzt werden können. Außerdem ist sowohl aufgrund der kleineren Filmdimensionen (der ferroelektrischen Schicht und auch der Metallisierungen) als auch aufgrund der Strukturierungsmöglichkeiten eine bessere Miniaturisierung und

insbesondere Integration in komplexe Bauelemente möglich. Das ermöglicht sowohl eine große Abstimmbarkeit der Dielektrizitätskonstanten bei geringeren angelegten Gleichspannungen als auch gegebenenfalls eine Reduktion der Verluste. So zeigt Abb. 12 die Abstimmbarkeit einer planaren Dünnschicht-SrTiO₃-Kapazität als Funktion der angelegten Gleichspannung.

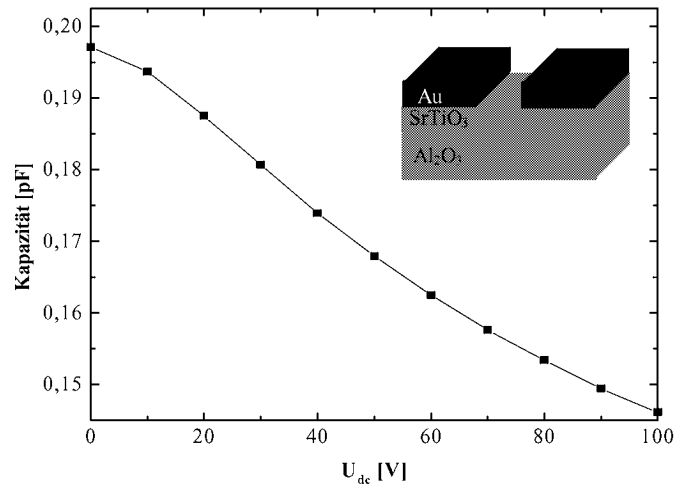


Abb. 12 Abstimmbarkeit einer auf einer SrTiO₃-Dünnschicht basierenden planaren Kapazität bei einer Temperatur von $T = 77K$.

2.6.2 Qualitätsfaktor K

Die qualitative Einordnung und Bewertung von abstimmbaren Kapazitäten hinsichtlich ihrer Verwendbarkeit in Hochfrequenzbauelementen (z. B. Resonatoren, Filter, Phasenschieber) erfolgt üblicherweise durch einen Qualitätsfaktors K. In ihm sind sowohl die Abstimmbarkeit als auch die in der Kapazität auftretenden Verluste zusammengefasst. Eine mögliche und oft verwendete Definition ist gegeben durch [Vend99b]:

$$(Gl. 29) \quad K(U_{dc}) = \sqrt{\frac{(n(U_{dc}) - 1)^2}{n(U_{dc}) \cdot \tan \delta(0V) \cdot \tan \delta(U_{dc})}}$$

Ein höherer Qualitätsfaktor K bei einer vorgegebenen Biasspannung U_{dc} ist also durch eine höhere Abstimmbarkeit n oder niedrige Verluste $\tan \delta$ bedingt. Es gilt als Faustregel, dass abstimmbare Hochfrequenzkapazitäten für die meisten Hochfrequenzanwendungen die Bedingung $K > 50$ erfüllen sollten [Vend99b]. Im Hinblick auf die Anwendung solcher abstimmbaren Kapazitäten ist dabei natürlich von entscheidender Bedeutung, dass dieses Kriterium schon bei kleinen, technisch sinnvollen Biasspannungen erfüllt wird.

2.6.3 Nichtlineare Mechanismen und Intermodulationsstörungen

Wichtig, für den Einsatz dünner SrTiO₃-Schichten in Bauelementen der Hochfrequenztechnik, aber bisher weitestgehend nicht untersucht, sind die Einflüsse der nichtlinearen dielektrischen Eigenschaften der Schichten. Eine spannungsabhängige Dielektrizitätskonstante bedeutet nichtlineares Verhalten, da die Abstimmbarkeit nicht nur

durch eine angelegte Gleichspannung, sondern auch durch hochfrequente Felder in Mikrowellenbauelementen hervorgerufen werden kann. Die Folge sind harmonische Signale höherer Ordnung und Intermodulationsstörungen, ein Problem, das insbesondere in der Informationstechnologie unerwünscht ist.

Allgemein wird der Einfluss nichtlinearer Materialparameter auf eine elektromagnetische Welle beschrieben durch:

$$(Gl. 30) \quad E = \gamma \cdot K.$$

Dabei steht E für die elektrische Feldstärke, γ für die nichtlineare Materialkonstante (z. B. den Widerstand R oder die Dielektrizitätskonstante ϵ) und K für die korrelierte Feldgröße (z. B. die Magnetfeldstärke H oder die Verschiebungsfeldstärke D). Im Allgemeinen ist γ eine Konstante. Im nichtlinearen Fall kann ist γ abhängig von K und kann durch eine Potenzreihenentwicklung um den Nullpunkt ersetzt werden:

$$(Gl. 31) \quad E = \sum_{i=1}^{\infty} \gamma_i K^i.$$

Bekannt und zum Teil auch untersucht sind solche nichtlinearen Effekte zum Beispiel bei Hochfrequenzbauelementen aus Hochtemperatursupraleitern, bei denen ein nichtlinearer Oberflächenwiderstand R_S schon bei relativ kleinen Mikrowellenleistungen starke Intermodulationsstörungen verursachen [Lahl01].

Im Folgenden sollen beispielhaft die physikalischen Grundlagen des nichtlinearen Verhaltens von Hochtemperatursupraleitern skizziert werden. Ein Erklärungsansatz für Ferroelektrika findet sich in der Diskussion der experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit in Kapitel 4.2.

Im Falle von Hochtemperatursupraleitern ist das elektromagnetische Mikrowellenfeld gegeben durch:

$$(Gl. 32) \quad E = R_S \cdot H$$

Im nichtlinearen Bereich muss der konstante Oberflächenwiderstand R_S durch eine Potenzreihenentwicklung ersetzt werden, die sich aus (Gl. 31) ergibt:

$$(Gl. 33) \quad E = \sum_{i=1}^{\infty} \gamma_i H^i,$$

deren erster Term $\gamma_1 = R_S(0)$ den linearen Anteil beschreibt. Intermodulationen und harmonische Signale entstehen, wenn zwei periodische elektromagnetische Signale unterschiedlicher Frequenzen ω_1 und ω_2 einstrahlen:

$$(Gl. 34) \quad H(t) = H_0 \cdot (\cos \omega_1 t + \cos \omega_2 t).$$

So lässt sich allgemein zeigen, dass in diesem Fall harmonische Signale bei Frequenzen von

$$(Gl. 35) \quad \omega_k = k \cdot \omega_1 \text{ und } \omega_l = l \cdot \omega_2 \quad , \quad k, l = 2, 3, 4, 5 \dots$$

sowie Intermodulationssignale bei Frequenzen von

$$(Gl. 36) \quad \omega_{n,m} = n \cdot \omega_1 - m \cdot \omega_2, \quad n, m = 1, 2, 3, \dots$$

entstehen. Da (i) die Terme gerader Ordnung $i = 0, 2, 4, \dots$ in (Gl. 33) naturgemäß verschwinden, d.h. $\gamma_i = 0$ für $i = 0, 2, 4, \dots$, (ii) neben dem linearen Term $\gamma_1 \cdot E$ der erste nichtlineare Term $\gamma_3 \cdot E^3$ dominiert und (iii) insbesondere die Störungen im Frequenzbereich des Primärsignals für Anwendungen entscheidend sind, ist besonders die Intermodulationsstörung des ersten nichtlinearen Terms ($i=3$) zu berücksichtigen. Unter Vernachlässigung der Terme höherer Ordnung ergibt sich die Potenzreihe zu:

$$(Gl. 37) \quad E = \gamma_1 \cdot H + \gamma_3 \cdot H^3.$$

Die entstehenden Mikrowellensignale erhält man durch Einsetzen von (Gl. 34) in (Gl. 37). Durch Potenzen und Mischprodukte der Kosinusterme der beiden Kreisfrequenzen ω_1 und ω_2 entstehen dann zusätzliche Signale. Man erhält:

$$(Gl. 38) \quad E = \left(\gamma_1 H_0 + \frac{5}{4} \gamma_3 H_0^3 \right) \cdot [\cos \omega_1 t + \cos \omega_2 t] + \frac{1}{4} \gamma_3 H_0^3 \cdot [\cos 3\omega_1 t + \cos 3\omega_2 t] + \frac{3}{4} \gamma_3 H_0^3 \cdot [\cos(2\omega_1 - \omega_2)t + \cos(2\omega_2 - \omega_1)t + \cos(2\omega_1 + \omega_2)t + \cos(\omega_1 + 2\omega_2)t]$$

Abb. 13 zeigt eine schematische Darstellung eines typischen Intermodulationsspektrums, das aufgrund des ersten nichtlinearen Terms ($i = 3$) auftritt.

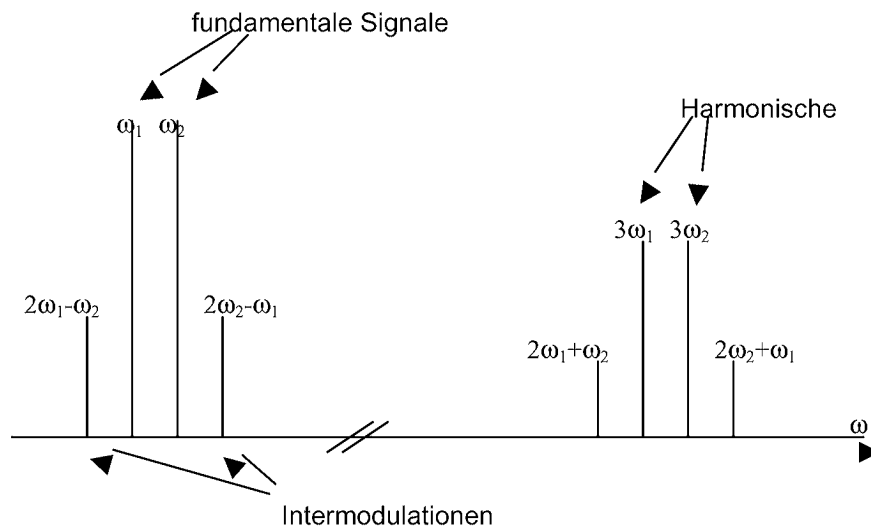


Abb. 13 Schematische Darstellung der Amplituden des durch den ersten nichtlinearen Term entstehenden Frequenzspektrums bei Einstrahlung zweier fundamentaler Signale bei den Kreisfrequenzen ω_1 und ω_2 .

Die Signale in einem Abstand $\delta\omega = \omega_1 - \omega_2$ oberhalb und unterhalb der fundamentalen Signale entstehen durch eine Mischung der beiden Frequenzen ω_1 und ω_2 (Intermodulationen). Da ihre Amplituden proportional zu γ_3 sind, werden sie Intermodulationen dritter Ordnung

genannt. Unter Berücksichtigung von Termen höherer Ordnung i entstehen jedoch weitere Intermodulationen der Frequenzen $\omega_{m,n} = m \cdot \omega_1 - n \cdot \omega_2$ in Abständen $i \cdot \delta\omega$ von den fundamentalen Signalen.

Neben den Intermodulationen entstehen durch die Nichtlinearität auch Vielfache sowohl der fundamentalen als auch der Intermodulationssignale. Durch die nichtlinearen Terme γ_i wird jeweils die Harmonische der Ordnung i erzeugt.

Da alle harmonischen Signale einen großen Frequenzabstand zu den fundamentalen Signalen besitzen, können sie in Applikationen leicht herausgefiltert werden. Ein größeres Problem stellen die Intermodulationssignale insbesondere der dritten Ordnung dar. Sie liegen den fundamentalen Signalen am nächsten und besitzen die höchste Amplitude. Dabei skaliert die Hochfrequenz-Leistungsabhängigkeit der Intermodulationssignale theoretischen Überlegungen zufolge entsprechend [Vend97]:

$$(Gl. 39) \quad P_{3,-3} \propto P_1^3.$$

Daher steigt die Amplitude der Intermodulationssignale $P_{3,-3}$ steiler an als die der fundamentalen Signale P_1 und es kann ein extrapolierter Schnittpunkt abgeschätzt werden, bei dem die Leistung des Intermodulationssignals die Leistung des Fundamentalsignals im Falle einer konstanten Steigung erreichen würde. Dieser theoretische Schnittpunkt wird als TOI („third order intercept“) bezeichnet und dient oft als Kriterium für eine Leistungsverträglichkeit von Hochfrequenz-Bauelementen hinsichtlich der auftretenden Intermodulationen. Abb. 14 zeigt als Beispiel die Bestimmung des TOI eines koplanaren Resonators auf der Basis einer gesputterten $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ -Schicht.

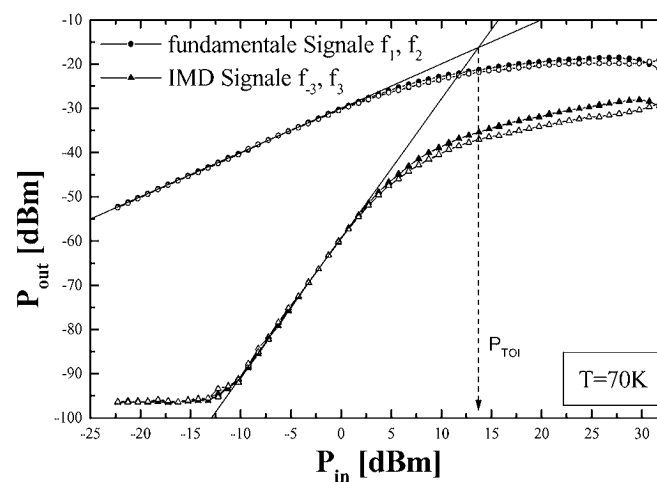


Abb. 14 Bestimmung des TOI („third order intercept“) am Beispiel eines $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ -Resonators [Lahl01b].

Es muss erwartet werden, dass ähnliche Effekte aufgrund ihrer nichtlinearen elektromagnetischen Eigenschaften auch in dünnen SrTiO_3 -Filmen auftreten. Tatsächlich haben erste Messungen an abstimmbaren Mikrowellenresonatoren auf der Basis solcher

dünnen SrTiO₃-Filme [Kozy98] bereits gezeigt, dass Intermodulationssignale auch in solchen Bauelementen eine Rolle spielen und gemessen werden können. Allerdings wurde an den experimentell untersuchten Proben abweichend von (Gl. 39) ein geringerer Anstieg der Intermodulationssignale gemäß

$$(Gl. 40) \quad P_3 \propto P_1^2$$

gefunden.

3 Präparation und Charakterisierung

In diesem Kapitel werden die im Rahmen der Arbeit verwendeten Methoden zur Schichtherstellung und -charakterisierung vorgestellt. Kapitel 3.1 erläutert zunächst die Herstellung der SrTiO_3 -Schichten mit Hilfe eines Kathodenzerstäubungsverfahrens („Sputter-Verfahren“). Kapitel 3.2 enthält die wichtigsten hier verwendeten Methoden zur Charakterisierung der Struktur der SrTiO_3 -Schichten, während Kapitel 3.3 die Methoden zur Bestimmung der dielektrischen und nichtlinearen Mikrowelleneigenschaften der Filme beschreibt.

3.1 Herstellung der SrTiO_3 -Schichten

3.1.1 Substratauswahl

Ein wichtiger Faktor bei der Herstellung dünner Schichten ist die Wahl eines geeigneten Substratmaterials. So sollten für ein epitaktisches Aufwachsen der Schicht die Kristallstruktur und die Gitterkonstanten von Schicht und Substrat möglichst gut übereinstimmen. Neben der guten Gitteranpassung bei Raumtemperatur sollten sich dabei auch die Ausdehnungskoeffizienten von Substrat und Schicht ähneln, da die SrTiO_3 -Schichten bei Temperaturen von etwa 650°C bis 880°C deponiert werden, ihr mögliches Einsatzgebiet sich jedoch von 40K bis 300K erstreckt. Daher würden zu stark unterschiedliche Ausdehnungskoeffizienten rasch zu Spannungen in der Schicht führen, die einerseits zu veränderten dielektrischen Eigenschaften, andererseits sogar zu mechanischer Zerstörung z.B. durch Rissbildung führen könnten [Zait98]. Des weiteren muss das Substrat chemisch mit der darauf deponierten Schicht verträglich sein, so dass selbst bei hohen Depositionstemperaturen keine chemischen Reaktionen zwischen den beiden Materialien einsetzen. Schließlich sollten im Hinblick auf mögliche Anwendungen im Hochfrequenzbereich auch die dielektrischen Verluste (charakterisiert durch den $\tan\delta$ -Wert des Substratmaterials) so klein wie möglich sein. Tabelle 1 zeigt einige wichtige Materialeigenschaften möglicher Substratmaterialien. Zusätzlich sind die Eigenschaften eines idealen Kandidaten für Pufferschichten aufgeführt, des CeO_2 , das mittels eines Standarddepositionsprozesses epitaktisch auf einige der Substrate aufgebracht werden kann.

Als Substratmaterial für Hochfrequenzanwendungen bietet sich aufgrund seiner extrem niedrigen Verluste Saphir (Al_2O_3) an. Es besitzt neben guten mechanischen Eigenschaften, einer exzellenten Kristallinität und Oberflächenpolitur vor allem sehr geringe dielektrische Verluste von $10^{-8} < \tan\delta < 10^{-6}$ im relevanten Frequenzbereich von 1GHz – 2GHz. Zudem ist es relativ kostengünstig und kann ohne weiteres in größeren Abmessungen hergestellt werden. Des weiteren bietet es sich als Substrat für die Deposition von Hochtemperatursupraleiterschichten an. Zum Beispiel besteht ein Standarddepositionsprozess für die Abscheidung von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ auf CeO_2 -gepuffertem Saphir. Somit ist die Kombination von SrTiO_3 mit

Hochtemperatursupraleitern, die sich durch niedrigste Hochfrequenzverluste auszeichnen, auf Saphir möglich.

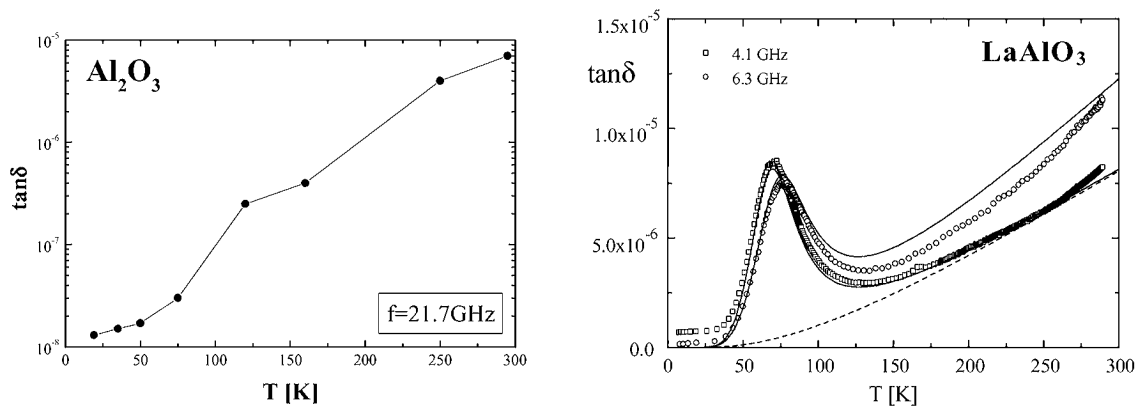


Abb. 15 Temperaturabhängigkeit des Verlusts eines Saphir- [Krup99] (links) und eines LaAlO_3 -Einkristalls [Zucc97] (rechts).

Abb. 15 zeigt die Temperaturabhängigkeit des Verlustes $\tan\delta$ von zwei möglichen Substraten, dem Al_2O_3 sowie dem LaAlO_3 . Besonders bei tiefen Temperaturen liegen die Werte für Al_2O_3 weit unter denen von LaAlO_3 . Auffällig ist außerdem das Maximum des Verlustes des LaAlO_3 bei einer Temperatur um $T \approx 77\text{K}$, das insbesondere für Tieftemperaturanwendungen (z. B. Kombination mit Hochtemperatursupraleiter) nachteilig erscheint.

Material	r-cut Al_2O_3	CeO_2 (Puffer)	YSZ	LaAlO_3	MgO	SrTiO_3	Si	GaAs
Struktur	hexagonal	kubisch	kubisch CaF_2	rhombisch, perowskit	kubisch	kubisch perowskit	Diamant	Zinkblende
Gitterparameter a,b,c [nm]	a=0.476 c=1.297	a=0.541	a=0.511 -0.522	a=0.536, c=1.31	a=0.421	a=0.3905	a=0.543	a=0.565
Dichte ρ [g/cm^3]	3.99	7.13	5.9	6.57	3.57	5.12	2.329	5.318
Schmelzpunkt T_s [K]	2040	2600	2550	2100	2800	2080	1685	1513
Phasenübergang	-	-	-	kubisch	-	-	-	-
Therm. Ausdehnung α_{th} [$10^{-6}/\text{K}$]	9.4-11.6 anisotrop	9.9	11	10	8	9.4	4.2	5.7
Dielektr.-konstante ϵ	9.4-11.4 anisotrop	21.2	27-33	23.4	9.6-9.8	300@300K 1800@77K 19000@4K	11.9	12.9
Verlust $\tan\delta$ (77 K)	10^{-6} - 10^{-8} @10GHz	k.A.	$>6 \cdot 10^{-6}$	10^{-5} @ 6,4GHz	10^{-3}	$2 \cdot 10^{-4}$ @9GHz	10^{-3}	$(0.6-2) \cdot 10^{-3}$

Tabelle 1: Materialeigenschaften einiger Substrate bzw. Pufferschichten (CeO_2), soweit nicht vermerkt, bei Raumtemperatur [Holl94], [Pies87].

Da das SrTiO_3 wegen der relativ großen Gitterfehlانpassung nur sehr schwer epitaktisch direkt auf Saphir deponiert werden kann, ist unter Umständen die Verwendung einer Pufferschicht vorteilhaft, die chemische Interdiffusion zwischen Substrat und Schicht verhindert und eine epitaktische Kristallausrichtung des SrTiO_3 ermöglicht. Als idealer Kandidat hat sich das CeO_2 erwiesen, das daher auch im Rahmen dieser Arbeit verwandt wurde.

3.1.2 Schichtdeposition

Es existiert eine Vielzahl von unterschiedlichen Herstellungsverfahren für dünne SrTiO_3 -Schichten. Ausgehend von Techniken wie der Laser-Ablation („pulsed laser deposition“, PLD), der chemischen Gasphasenabscheidung („chemical vapour deposition“, CVD) oder dem thermischen Aufdampfen bis hin zum Aufspinnen oder dem Sol-Gel-Verfahren. Die in dieser Arbeit verwandten SrTiO_3 -Schichten und CeO_2 -Pufferschichten wurden mit Hilfe der Magnetron-Kathodenzerstäubung („Magnetron-Sputter-Technik“) hergestellt. Dieses Verfahren eignet sich für die Herstellung von glatten, morphologisch und kristallin mit hoher Perfektion gewachsenen Filmen [Wörd91]. In Abb. 16 sind die essentiellen Komponenten der eingesetzten Sputteranlage schematisch dargestellt.

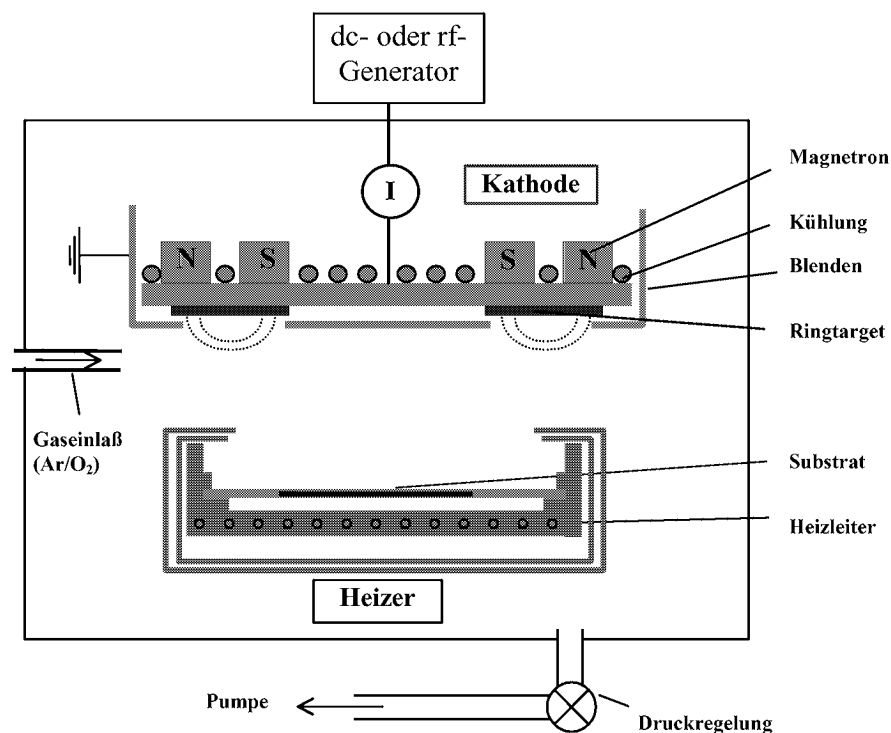


Abb. 16 Schematische Darstellung der „on-axis“-Magnetron-Sputteranlage für die Abscheidung der SrTiO_3 - und CeO_2 -Schichten.

Bei der Kathodenzerstäubung werden Teilchen von einem Target durch das Auftreffen beschleunigter Ionen abgetragen. Diese kondensieren dann auf dem Substrat zu einem dünnen Film. Die Ionen des Sputtergases (meistens Ar oder Xe) werden durch eine Gasentladung zwischen zwei Elektroden erzeugt, die durch Gleich- (dc-Sputtern oder gepulstes dc-Sputtern)

oder Wechselströme (rf-Sputtern) bei 13.56 MHz gespeist werden. Letzteres ist z. B. bei der Deposition der isolierenden Materialien CeO_2 und SrTiO_3 erforderlich, um eine Aufladung des Targets zu verhindern. Da die kinetische Energie der Ionen nur zu einem geringen Teil für die Auslösearbeit der Targetteilchen benötigt wird, kommt es zu einer erheblichen Erwärmung des Targets. Aus diesem Grund wird die Kathode stets mit Wasser gekühlt.

Beim im Rahmen dieser Arbeit verwandten Magnetronsputtern befindet sich am Target zusätzlich eine Magnetanordnung, die dazu dient, die Elektronen durch die in ihrem Magnetfeld auftretende Lorentzkraft auf schraubenförmige Bahnen im Plasma zu zwingen. Dies führt zu einer höheren Ionisierungswahrscheinlichkeit im sogenannten „track“, der sich zwischen den beiden Magnetpolen befindet, und somit zu einer höheren Abtragsrate im Trackbereich, was üblicherweise höhere Abscheidungsraten auf dem Substrat zur Folge hat.

Da der Sauerstoffanteil in den SrTiO_3 -Schichten eine wichtige Rolle spielt, ist es notwendig, dem Inertgas (hier: Ar) als reaktive Komponente auch einen variablen Anteil von Sauerstoff zuzugeben.

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Depositionsparameter sind in Tabelle 2 aufgeführt.

Target	CeO_2	SrTiO_3
Sputtermodus	rf	rf
Substrat	Al_2O_3	$\text{CeO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$
Prozessgas	66/10	66/10
Ar/O₂ [sccm]		66/20
Gasdruck [Pa]	13	4
Kathode	6“ Magnetron	6“ Magnetron
Leistung [W]	130	200-260
Spannung [V]	50	150-200
Heizertemperatur [°C]	850	650-870
Wachstumsrate [nm/h]	30	150
Nachbehandlung	Abkühlen bei Sputterdruck oder in- situ-Beschichtung	Abkühlen in O ₂ - Atmosphäre bei 0,5bar

Tabelle 2: Depositionsparameter für die Herstellung der gesputterten Schichten und Schichtsysteme. Die Heizertemperatur wurde für die Herstellung der SrTiO_3 -Schichten systematisch variiert und deren Einfluss auf die kristallinen und dielektrischen Eigenschaften untersucht.

3.2 Charakterisierung der Struktur der SrTiO₃-Schichten

Entscheidende Parameter für die Beschreibung der Qualität der hergestellten Schichten sind ihre strukturellen Eigenschaften und ihre Oberflächenbeschaffenheit. Für die Bestimmung der Kristallqualität stand ein Zwei-Kreis-Röntgendiffraktometer zur Verfügung. Die Oberflächenmorphologie wurde mit Hilfe der Rasterelektronen- (REM) und Lichtmikroskopie (LM) untersucht.

3.2.1 Röntgendiffraktometrie

Die Kristallstruktur der Filme wurde mit Hilfe eines Röntgendiffraktometers analysiert. Abb. 17 skizziert den Aufbau des verwandten Röntgendiffraktometers.

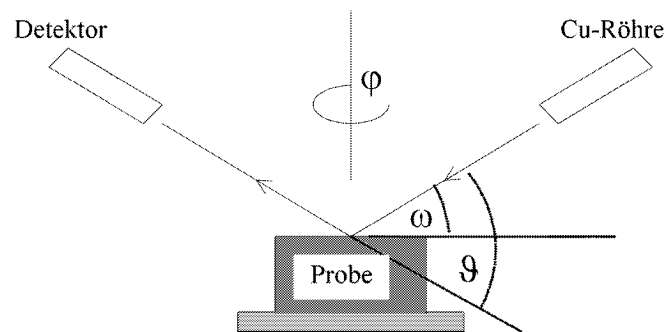


Abb. 17 Schematische Darstellung des Röntgendiffraktometers.

Üblicherweise wurden zuerst Messungen in Bragg-Brentano-Geometrie ($\vartheta = 2\omega$) durchgeführt, bei denen ein Winkelbereich von etwa 15°-70° auf Beugungsreflexe untersucht wurde, aus denen sich dann entsprechend der Bragg-Bedingung

$$(Gl. 41) \quad n\lambda = 2d \cdot \sin \frac{\vartheta}{2}$$

Aussagen über Kristallstruktur und Kristallorientierung ableiten lassen. Hierbei ist λ die Wellenlänge der verwendeten Röntgenstrahlung, d der Abstand der Gitternetzebenen und ϑ der Winkel zwischen dem einfallenden und dem gebeugten Strahl.

Als nächstes wurden sogenannte „Rockingkurven“ einzelner Reflexe aufgenommen, um die kristalline Qualität bestimmen zu können. Bei der Aufnahme dieser Kurven ist die Winkelposition des Detektors auf den zu untersuchenden Reflex der Schicht fixiert, das Substrat mit dem zu untersuchenden Film bewegt sich („rocking“) um den dazu gehörenden Winkel ω , bei dem im Falle von perfektem kristallinen Wachstum normal zur Oberfläche der maximale Röntgenreflex zu erwarten ist. Bei einem perfekten Einkristall dürfte dann nur die apparative Verbreiterung detektiert werden ($\ll 0,1^\circ$), da nur für den exakten Winkel $\omega = \vartheta/2$ die Bragg-Bedingung erfüllt wäre. Derartig schmale Rockingkurvenbreiten werden z. B. für die Reflexe des Saphirsubstrates gemessen ($\Delta\omega(0221) \approx 0,03^\circ$). Dagegen verbreitert sich bei Filmen schlechterer kristalliner Orientierung die aufgenommene Kurve. Abb. 18 zeigt einen Vergleich zweier Rockingkurven des (110)-Röntgenreflexes zweier SrTiO₃-Schichten von unterschiedlicher kristalliner Güte, deren Halbwertsbreite (FWHM) abhängig von der bei der

Herstellung eingestellten Substrattemperatur stark variieren. Die unterschiedliche Position des Maximums der Rockingkurve gibt einen Hinweis auf unterschiedliche Gitterkonstanten a der charakterisierten Schichten und damit auf eine unterschiedliche Verspannung der SrTiO_3 -Gitter. Der genaue Einfluss der Gitterverspannung auf die Eigenschaften der SrTiO_3 -Schichten wird in Kapitel 4.1 noch genauer untersucht werden.

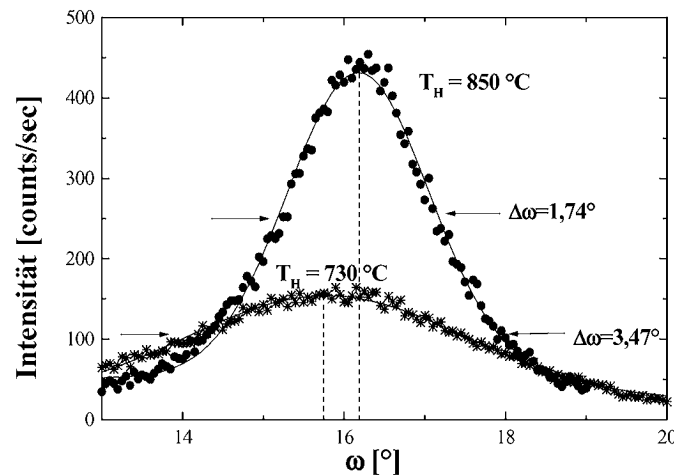


Abb. 18 Rockingkurve des (110)-Reflexes zweier SrTiO_3 -Schichten unterschiedlicher kristalliner Güte aufgrund unterschiedlicher Substrattemperaturen. T_H bezeichnet die Heiztemperatur während des Depositionsprozesses. Die unterschiedliche Position des Maximums gibt einen Hinweis auf unterschiedliche Gitterkonstanten a und damit auf unterschiedliche Verspannungen des SrTiO_3 -Gitters. Dies wird in Kapitel 4.1 noch genauer diskutiert.

3.3 Dielektrische Dünnschichtteststrukturen

Zur elektronischen Charakterisierung wurden SrTiO_3 -Schichten in Kapazitäten und Hochfrequenzbauelemente aus Gold und Kupfer integriert und in einem im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten und automatisierten Hochfrequenzmessplatz bzw. Kapazitätsmessplatz vermessen.

3.3.1 Strukturierung der Schichten und Schichtsysteme

Für Messungen der Eigenschaften der SrTiO_3 -Filme in Kapazitäten oder Hochfrequenzbauelementen ist die Strukturierung der verwandten Schichten (SrTiO_3 -, Au- oder Cu-Schichten) notwendig. Die Strukturierung erfolgte mittels optischer Lithographie und Ionenstrahlätzen (ion beam etching, IBE).

Für die Lithographie wird auf das gereinigte Substrat mit dem zu strukturierenden Film zunächst ein UV-Licht-empfindlicher Photolack (hier AZ 5206, AZ5210 bzw. AZ5214) mit 4000 U/min aufgeschleudert und bei 90°C 5 Minuten gebacken. Nach einer

„Randentlackung“ zur Entfernung der Lackwülste an den Ecken des Substrates wird die gewünschte Struktur mittels Chrommaske optisch übertragen. Hierzu wird die Maske mit der gewünschten Struktur über der Probe positioniert und der Photolack durch diese Maske optisch belichtet (typische Belichtungsparameter: $P = 7 \text{ mW/cm}^2$, $t = 4 \text{ s}$, Kontaktbelichtung). Anschließend wird der Lack entwickelt (Entwickler AZ 400K 1:4), um so die belichteten Bereiche des Lacks zu entfernen. Damit ist die Struktur von der Chrommaske auf die Lackschicht übertragen.

Im anschließenden Ätzschritt wird diese Struktur nun durch das sogenannte Ionenstrahlätzen (Ion-Beam-Etching) auf die unter dem Photolack liegende Schicht übertragen. Dazu wird das Substrat mit Vakuumfett auf einem Probenhalter befestigt, um eine gute Wärmeabkopplung zu gewährleisten und der Probenhalter während des Ätzprozesses auf -15°C gekühlt. Dann wird die rotierende Probe einem Beschuss von in einem elektrischen Feld ($U = 250\text{V}$) beschleunigten Ar-Ionen ausgesetzt. Dabei trifft ein gleichförmig gerichteter Strahl ($J = 0,25\text{mA/cm}^2$) auf die Probe auf. Durch Impulsübertragung werden die jeweils obersten atomaren Lagen des Films von der Probe abgetragen, so weit sie nicht durch den Photolack vor dem Ionenstrahl geschützt sind. Der Endpunkt des Ätzprozesses wird mit Hilfe eines Massenspektrometers (SIMS, secondary ion mass spectrometry) bestimmt, das die Zusammensetzung des Ätzkammergas analysiert.

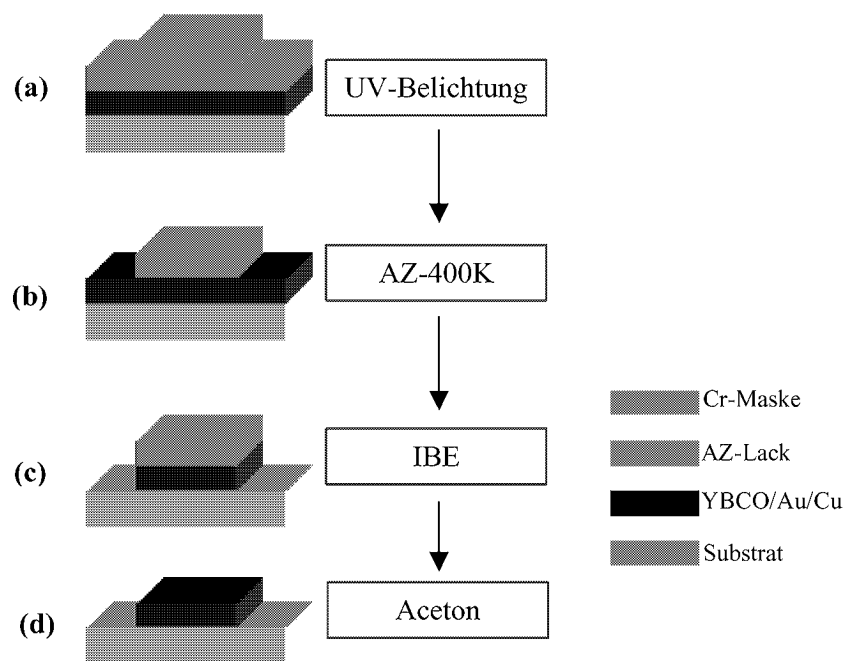


Abb. 19 Hauptschritte bei der Strukturierung der leitenden Schichten: (a) Belichtung des Photolacks durch eine Cr-Maske. (b) Lackstruktur nach Behandlung mit dem Entwickler, (c) Trockenätzen durch IBE und (d) Entfernung des Photolacks mit Aceton.

In Abb. 19 sind die Hauptschritte der Strukturierung der Filme noch einmal graphisch zusammengefasst.

Nach dem Ätzen werden Substrat und strukturierte Schichten dann noch einmal sorgfältig gesäubert. Dabei werden etwaige Reste des Vakuumfetts mit n-Hexan und der Photolack mit Aceton in einem Ultraschallbad entfernt und die Probe abschließend mit Propanol nachgereinigt, um eventuelle Rückstände zu vermeiden.

3.3.2 Beschreibung der Eigenschaften von hf-Bauelementen

Um eine möglichst einfache Beschreibung der Übertragungseigenschaften von beliebigen Hochfrequenzbauelementen (Kabel, Verstärker, Resonator, Abschwächer, etc.) zu erreichen, wird anstelle der elektromagnetischen Kenngrößen Strom und Spannung eine normierte, komplexe Amplitude a des hochfrequenten Wechselfeldes definiert in der Art, dass $|a|^2$ die von der elektromagnetischen Welle transportierte hf-Leistung ist.

Abb. 20 zeigt schematisch die Beschreibung eines 2-Tor-Bauelements. An jedem Tor ist eine einlaufende Welle a_1 bzw. a_2 und eine auslaufende Welle b_1 bzw. b_2 möglich. Die Beschreibung aller Übertragungseigenschaften des 2-Tors erfolgt dann durch die S-Parameter S_{ij} durch die Beziehung in Matrixform:

$$(Gl. 42) \quad \begin{pmatrix} b_1 \\ b_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix}.$$

Diese Beziehung gibt die an allen Toren j auslaufenden Wellen b_j für beliebige einlaufende Wellen a_i an. Bei linearen Bauelementen sind die S-Parameter konstant, d.h. unabhängig von den Amplituden a_i , bzw. von der transportierten hf-Leistung.

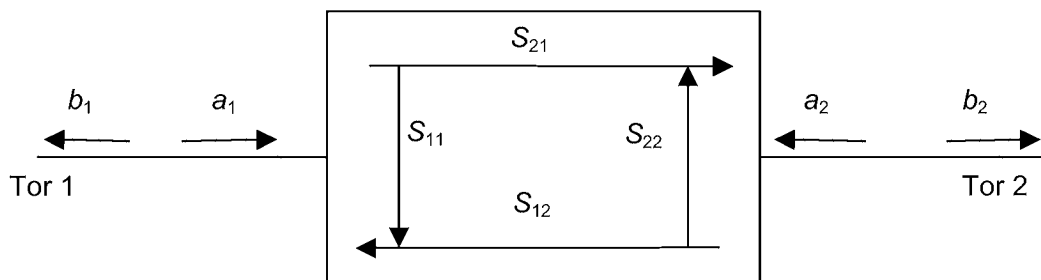


Abb. 20 Schematische Darstellung eines 2-Tor-Bauelements. An Tor 1 bzw. 2 auftretende hf-Signale werden durch einlaufende a_i bzw. auslaufende b_i normierte, komplexe Amplituden beschrieben. Das Bauelement lässt sich dann auch durch die S-Parameter beschreiben.

Bei höhertorigen Bauelementen erfolgt die Beschreibung durch eine entsprechend größere Matrix S_{ij} . Die S-Parameter $|S_{ij}|^2$ beschreiben für $i=j$ die Reflexion an dem jeweiligen Port bzw. für $i \neq j$ Transmission von Port j zu Port i . Durch die Definition der normierten, komplexen Amplitude a beschreibt das Betragsquadrat der S-Parameter das Verhältnis der

jeweiligen austretenden Leistung zur jeweiligen eingestrahnten Leistung bzw. das Quadrat der entsprechenden Verhältnisse der Amplituden der Strom- bzw. Spannungswellen:

$$(Gl. 43) \quad |S_{ij}|^2 = \frac{P_{out,j}}{P_{in,i}} = \left(\frac{I_{out,j}}{I_{in,i}} \right)^2 = \left(\frac{U_{out,i}}{U_{in,j}} \right)^2.$$

Die Angabe der S-Parameter erfolgt üblicherweise in dB:

$$(Gl. 44) \quad S_{ij} [dB] = 10 \cdot \log(S_{ij}).$$

Ein wichtiger Parameter aller hf-Bauelemente ist die Einfügedämpfung L (engl.: Insertion Loss), die die Abschwächung eines Signals beim Durchgang durch das Bauelement beschreibt. Die Einfügedämpfung wird durch den S-Parameter S_{21} charakterisiert und üblicherweise durch

$$(Gl. 45) \quad L = -10 \cdot \log(S_{21})$$

angegeben.

3.3.3 PC-Simulationen von hf-Bauelementen mit Hilfe von „Sonnet“

Für die Herstellung von Teststrukturen und Bauelementen für die Hochfrequenztechnik erwies es sich im Rahmen dieser Arbeit häufig als vorteilhaft, die Eigenschaften der geplanten Strukturen vor ihrer tatsächlichen Fertigung zunächst theoretisch zu simulieren, um Fehlversuche so weit wie möglich zu vermeiden. Weiterhin konnten mit Hilfe der Simulationen die verschiedenen experimentellen Ergebnisse und deren Modellierung überprüft werden. Für die Simulation von planaren Strukturen auf dielektrischen Substraten stand im Rahmen dieser Arbeit das Programmpaket „Sonnet“ zur Verfügung [Sonn96].

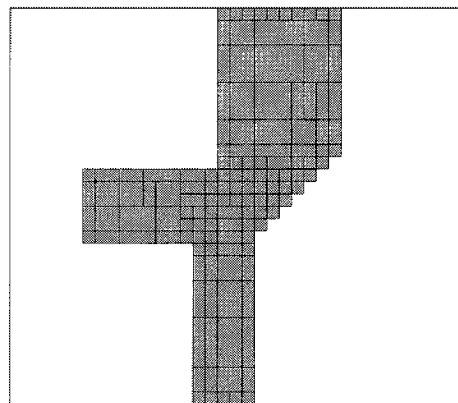


Abb. 21 Unterteilung („subsectioning“) zur Berechnung einer Beispielstruktur des Hochfrequenz-Simulationsprogramms „Sonnet“.

Mit diesem kommerziellen Programmen lassen sich unter anderem die Hochfrequenz-Übertragungseigenschaften (S-Parameter) mehrlagiger planarer Strukturen in Kombination mit dielektrischen Schichten simulieren. Hierzu wird die zu simulierende Struktur in kleine Zellen („subsections“) aufgeteilt und die elektromagnetische Kopplung dieser Zellen

dreidimensional berechnet. Daraus ergibt sich die Stromverteilung in jeder dieser Zellen und damit auch die S-Parameter.

Abb. 21 zeigt die automatische Zellenunterteilung des Programms an einer einfachen Beispielstruktur. Es ist zu sehen, wie das Programm an kritischen Stellen wie Verzweigungen und Randbereichen der Struktur ein feineres Raster anlegt, um ein exakteres Ergebnis zu erreichen.

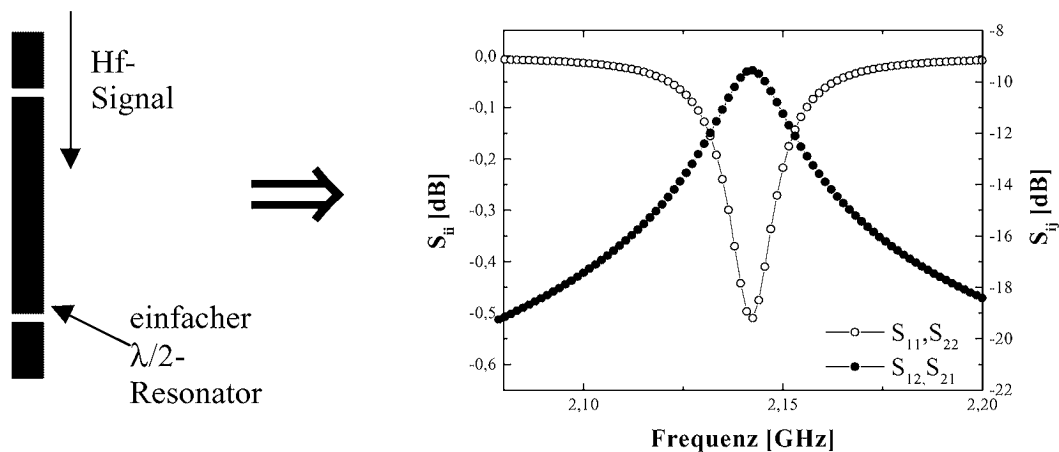


Abb. 22 Numerische Simulation (Computerprogramm „Sonnet“) der frequenzabhängigen Transmissionen S_{ij} am Beispiel eines einfachen $\lambda/2$ -Resonators.

Berechnet wird unter anderem die Frequenzabhängigkeit der Durchgangsparameter S_{ij} . Wichtigster Parameter der meisten hf-Bauelemente ist die Einfügedämpfung L (siehe Kapitel 3.3.2), die die Abschwächung der Signale beim Durchgang durch das Bauelement beschreibt. Dieser Parameter wird auch in Kapitel 4.2 zur Beschreibung der Intermodulationssignale und damit der nichtlinearen Eigenschaften der SrTiO_3 -Schichten verwendet. Abb. 22 zeigt die Simulation des Signaldurchgangs am Beispiel eines einfachen $\lambda/2$ -Resonators.

3.3.4 Dielektrizitätsmessplatz

Zur elektrischen Charakterisierung der SrTiO_3 -Schichteigenschaften wurden Kapazitätsteststrukturen hergestellt und in einem hierzu aufgebauten, speziellen Messplatz (Dielektrizitätsmessplatz, siehe Abb. 23) charakterisiert.

Dieser Messplatz besteht aus einem Kapazitätsmessgerät (HP 4278A), einem temperaturregelbaren Heliumdurchflusskryostaten, einer Strom-/Spannungsquelle (Keithley 228), speziellen Schutzwiderständen $R = 1\text{M}\Omega$ und Schutzkapazitäten $C = 0,1\mu\text{F}$ sowie einem Messrechner zur automatisierten Messwertaufzeichnung. Er ermöglicht automatisierte simultane Messungen der Gesamtkapazität bei Messfrequenzen von 1KHz sowie 1MHz, Wechselfrequenzspannungsamplituden von 0,1V – 1V, dc-Biasspannungen von –100V bis 100V und Temperaturen von $T = 2,2\text{K}$ bis Raumtemperatur. Die Messgenauigkeit des Kapazitätsmessgeräts beträgt 10^{-17}F im Falle der Kapazität sowie 10^{-5} im Falle der Verluste. Die Temperatur wird mit Hilfe von zwei Temperaturwiderständen (aus Platin bei $T > 30\text{K}$ und Carbondglas für $T < 30\text{K}$) gemessen und mit Hilfe eines Heizwiderstandes und des

Heliumflusses reguliert. Über hochfrequenztaugliche Koaxialkabel (sogenannte „Semi-Rigid“-Koaxialkabel) werden die zu untersuchenden Proben im Kryostaten an die Messgeräte angeschlossen.

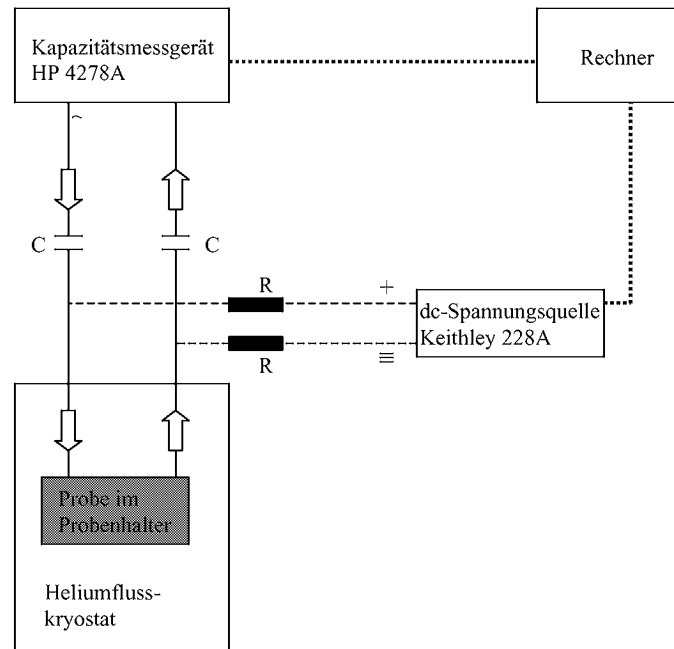


Abb. 23 Schematischer Aufbau des Dielektrizitätsmessplatzes. Er besteht aus einem Kapazitätsmessgerät HP4278A, einer Spannungsquelle Keithley 228A, einem Heliumflusskryostaten sowie einem Rechner zur Steuerung der Messgeräte und zur Datenspeicherung. Das Kapazitätsmessgerät ist von der dc-Spannung durch zwei Schutzkapazitäten C entkoppelt, die Probe durch zwei Schutzwiderstände R gesichert.

Die Proben selbst werden mit Hilfe von Leitsilber auf einem flachen Probenträger fixiert und die Kupferleiterbahnen des Probenträgers mit Hilfe von Bonddrähten mit der Kapazität der Probe kontaktiert (siehe Abb. 24).

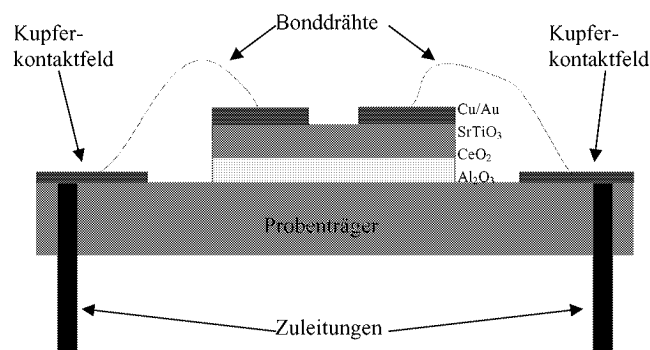


Abb. 24 Skizze eines Probenträgers für die Messung von Kapazitäten.

Zur Vermeidung störender Zusatzkapazitäten und -verluste durch den Probenhalter (Material: Kunstharz) wurde dieser verbessert. Es wurde der Bereich des Kunstharzes im elektromagnetischen Feld so weit wie möglich reduziert. Abb. 25 (a) zeigt als Vergleich ein Bild des ursprünglichen sowie des optimierten Probenhalters. Abb. 25 (b) zeigt den Vergleich der Temperaturabhängigkeit der Verluste der beiden Probenhalterdesigns. Besonders bei hohen Temperaturen konnte der Verlust des optimierten Probenhalters im Vergleich zum Standardprobenhalter um mehr als 50% gesenkt werden.

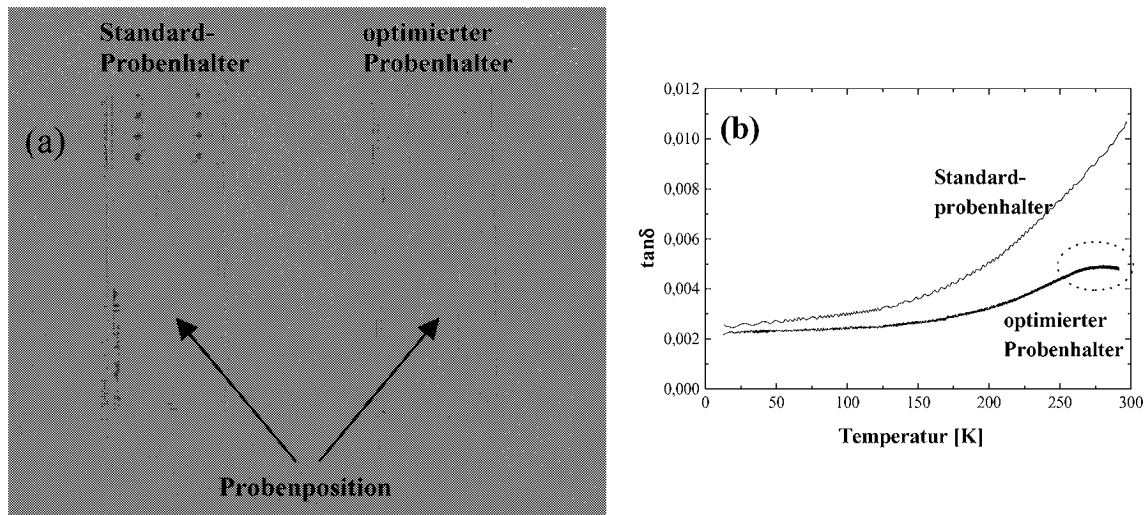


Abb. 25 (a) Bild des ursprünglichen Probenhalters (links) sowie des optimierten Probenhalters (rechts) sowie (b) temperaturabhängiger Verlust der beiden Probenhalterdesigns. Der charakteristische „Buckel“ des Kurvenverlaufs für hohe Temperaturen (siehe Markierung in (b)) konnte nur bedingt aus den Messungen der SrTiO_3 -Proben korrigiert werden, spielt aber für die weitere Auswertung keine wichtige Rolle.

Hingewiesen werden soll hier noch auf den charakteristischen Buckel in der $\tan\delta(T)$ -Kurve des optimierten Probenhalters bei hohen Temperaturen $T \approx 250\text{--}300\text{K}$. Dieser Kurvenverlauf lässt sich nicht vollständig durch Referenzmessungen aus den späteren Messdaten der SrTiO_3 -Proben in Kapitel 4 herausfiltern, sondern taucht als Artefakt in abgeschwächter Form in allen Messungen der Verluste auf. Da die Raumtemperaturwerte jedoch nicht weiter betrachtet wurden, ist von einer weitergehenden Optimierung (z. B. durch einen Wechsel des Probenhaltermaterials) Abstand genommen worden.

Da diese Messungen auf Frequenzen von 1KHz bzw. 1MHz beschränkt sind, wurde im Rahmen dieser Arbeit ebenfalls ein spezieller Messaufbau für Referenzmessungen der Kapazität und der Verluste bei Raumtemperatur und im GHz-Bereich (2.0GHz – 2.8GHz) geschaffen (siehe Abb. 26). Dabei wird die zu messende Kapazität auf den Resonatorspalt eines Mikrostreifenresonators der Resonanzfrequenz $f_0 \approx 2.7\text{GHz}$ und der Resonatorgüte $Q_0 \approx 200$ gepresst und die Änderung der Resonanzfrequenz Δf sowie die Gütenänderung ΔQ bestimmt. Mit Hilfe von zuvor durchgeführten Eichungen können aus diesen aufgenommenen

Messdaten die Kapazität C sowie der Verlust $\tan\delta$ der aufgedruckten Probe abgeschätzt werden.

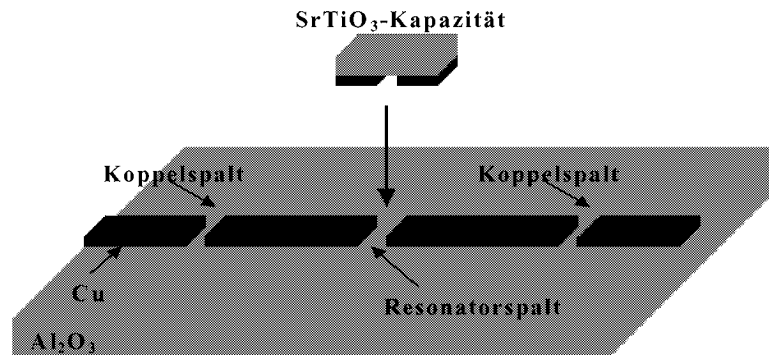


Abb. 26 Skizze des Mikrostreifenresonators zur Messung der Kapazität und des Verlustes der SrTiO_3 -Kapazitäten bei $f \approx 2.6\text{GHz}$ und Raumtemperatur. Die zu messende SrTiO_3 -Kapazität wird auf den Spalt des Mikrostreifenresonators gepresst und die Resonanzverschiebung Δf sowie die Gütenänderung ΔQ gemessen. Hieraus werden Kapazität und Verlust der SrTiO_3 -Kapazität bestimmt.

Mit Hilfe dieses Resonators wurden Referenzmessungen bei Raumtemperatur zur Verifizierung der bei niedrigen Frequenzen gemessenen SrTiO_3 -Parameter für den Einsatz in hf-Teststrukturen durchgeführt. Die dielektrischen Eigenschaften (ϵ und $\tan\delta$) zeigen im Rahmen der Messgenauigkeit ($\Delta C \approx 0.05\text{pF}$, $\Delta(\tan\delta) \approx 0.005$) jedoch keine signifikante Veränderung bei Frequenzen im GHz-Bereich gegenüber den Messungen bei 1MHz.

3.3.5 Intermodulationsmessplatz

Zur Messung der nichtlinearen Hochfrequenzeigenschaften der zu untersuchenden SrTiO_3 -Schichten wurde des weiteren speziell ein Intermodulationsmessplatz aufgebaut (siehe Abb. 27).

Hierbei werden zwei primäre Hochfrequenzsignale leicht unterschiedlicher Frequenz im 2-GHz-Bereich mittels zweier Hochfrequenzverstärker verstärkt, in einem hf-Combiner (IE Za2CS) zusammengeführt und auf die Probe gegeben. Da die hf-Verstärker (MA-LTD AM81, Verstärkungsfaktor: 42dB) für den Frequenzbereich von 1.9 - 2GHz ausgelegt waren, wurden üblicherweise Frequenzen von $f_1 = 1.94\text{GHz}$ und $f_2 = 1.96\text{GHz}$ verwandt. Zur Überprüfung der Mechanismen, die für die IMD-Signalerzeugung verantwortlich zeichnen, wurden jedoch auch unterschiedliche Frequenzdifferenzen (engl. beat frequency) im Bereich von $\Delta f = 100\text{kHz}$ bis 100MHz eingesetzt. Das in der Probe entstehende Spektrum an Hochfrequenzsignalen wird von einem Spektrumanalysator (Anritzu MS2661C) aufgenommen. Die Probe befindet sich dabei in einem abschirmenden Kupferresonator in einem Heliumflusskryostaten und kann wie im Falle des Dielektrizitätsmessplatzes (siehe Kapitel 3.3.4) von Raumtemperatur auf bis zu $T = 2.2\text{K}$ abgekühlt werden. Die Messüberwachung, -steuerung und Datenanalyse geschieht wiederum mittels eines Messrechners und hierzu entwickelter Software.

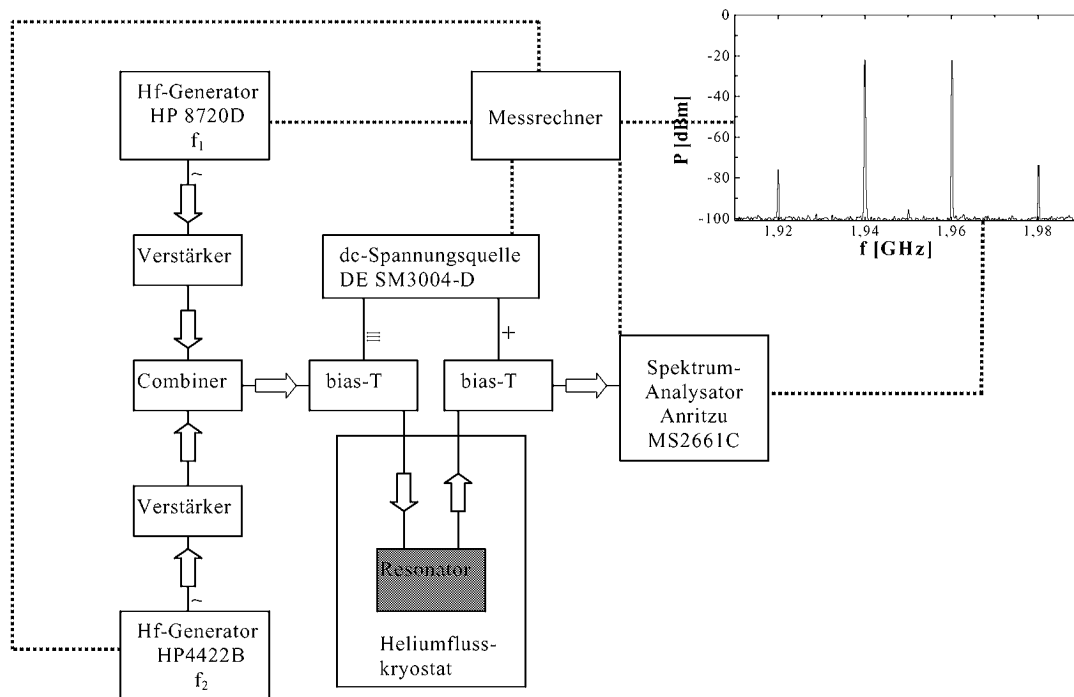


Abb. 27 Schematischer Aufbau des Intermodulationsmessplatzes mit einem typischem, vom Spektrum-Analysator und Messrechner aufgezeichneten IMD-Spektrum. Der Messplatz besteht aus zwei hf-Generatoren, zwei Verstärkern, einem Combiner, zwei bias-T-Stücken (engl. Bias-T), einer Spannungsquelle, einem Spektrumanalysator, einem Heliumflusskryostaten sowie einem Messrechner.

Die unmittelbare Kontaktierung der Probe geschieht dabei über bis zu vier Kontaktpins aus Gold, die mit Hilfe eines Federmechanismus gegen die Schichtseite der Probe gedrückt werden. In Abb. 28 ist diese Kontaktierung der Probe kurz skizziert.

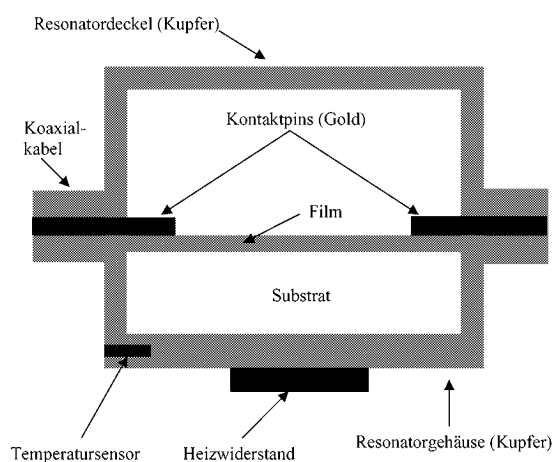


Abb. 28 Skizze des Resonatorgehäuses aus Kupfer mit Kontaktierung des Films.

Die reflektierten und transmittierten Signale werden wiederum durch „Semi-Rigid“-Kabel in den Spektrumanalysator zurückgeführt, um das Signal aufzunehmen, zu analysieren und zu speichern. Die Proben befinden sich während der Messungen jeweils in einem Resonatorgehäuse aus Kupfer, um Verluste durch Abstrahlung der hochfrequenten Signale zu verringern. Abb. 29 zeigt ein Photo des Probenhalters mit seinen Zuleitungen.

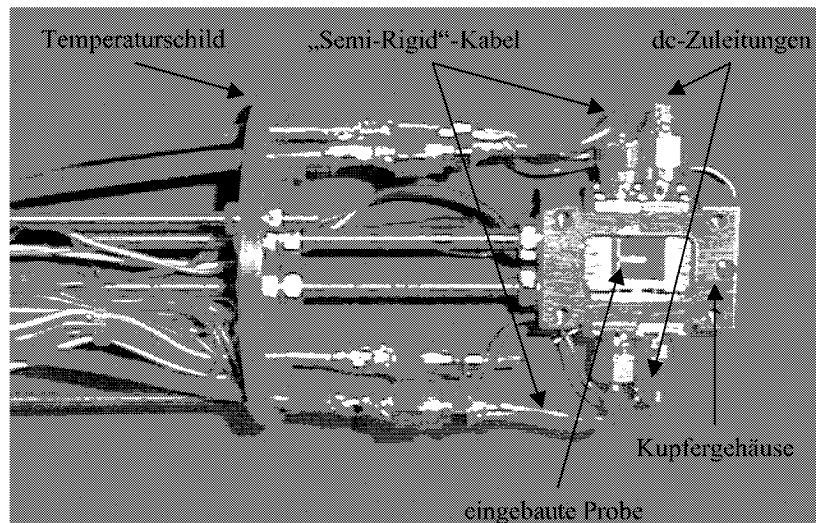


Abb. 29 Photo des Kupferresonatorgehäuses für die Messung von Bauelementen bei hohen Frequenzen.

Es besteht wie beim Dielektrizitätsmessplatz (siehe Kapitel 3.3.4) zusätzlich die Möglichkeit, mittels einer Strom-/Spannungsquelle (Delta Elektronika SM3004-D) über zwei sogenannte „bias networks“ (HP 11612A bias network) eine Gleichspannung U_{dc} an die gemessenen Proben anzulegen. Dabei schirmen die „bias networks“ die Spannungsquelle von den Hochfrequenzsignalen ab. Die Einfügedämpfung des Hochfrequenzsignals durch die „bias networks“ beträgt bei Messfrequenzen von $400\text{MHz} < f < 12.4\text{GHz}$ maximal 1dB.

3.3.6 Planare Kapazitätsgeometrie

Zur Bestimmung der dielektrischen Eigenschaften der gesputterten SrTiO_3 -Filme wurden im Rahmen dieser Arbeit Kapazitäten unterschiedlicher Geometrie hergestellt und charakterisiert. Zur Standardcharakterisierung wurde jedoch ausnahmslos eine planare Mehrschichtstruktur verwandt, im folgenden Standardkapazität genannt, die hier kurz beschrieben werden soll.

Zur Präparation der Standardkapazität wurden die SrTiO_3 -Schichten mit einer im Sputterverfahren (siehe Kapitel 3.1.2) hergestellten, ca. 300nm dicken Goldschicht bedeckt und wie in Kapitel 3.3.1 beschrieben zu planaren Kapazitäten strukturiert. Abb. 30 gibt die Geometrie einer solchen planaren Kapazitätsstruktur und die wichtigsten geometrischen Parameter wieder.

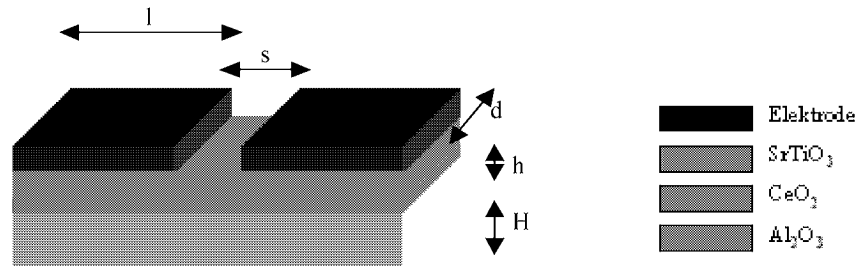


Abb. 30 Skizze einer planaren Standardkapazität auf der Basis eines ferroelektrischen SrTiO_3 -Films. Die wichtigsten geometrischen Parameter sind die Substratdicke H , die Schichtdicke h , die Breite d und die Länge l der Elektroden sowie die Spaltbreite s der Kapazität.

Zur Veranschaulichung zeigt Abb. 31 zwei Übersichtsaufnahmen einer solchen planaren Kapazität nach der vollständigen Strukturierung, die mit Hilfe eines Rasterelektronenmikroskops aufgenommen wurden.

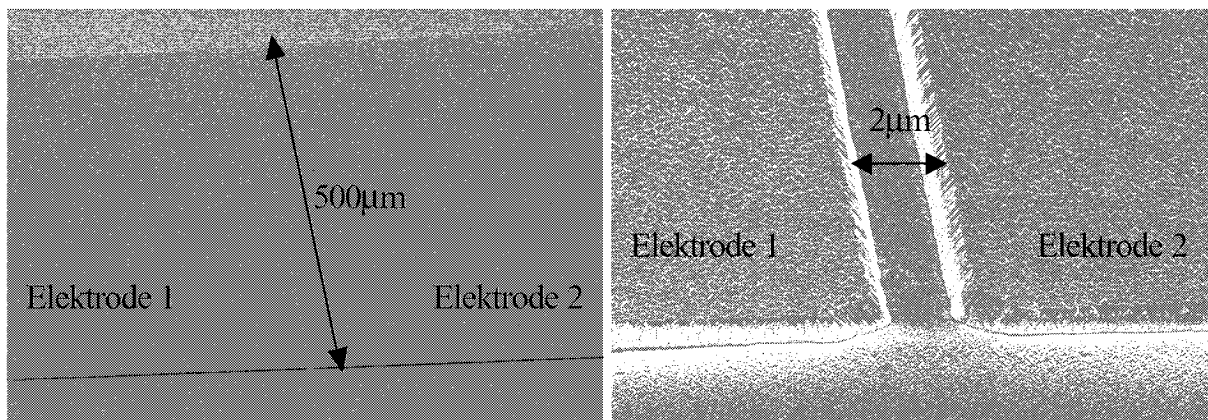


Abb. 31 Rasterelektronenmikroskopaufnahmen einer planaren Goldkapazität auf SrTiO_3 . Das rechte Bild zeigt eine Vergrößerung des Kapazitätsspalts. Die Spaltbreite beträgt in diesem Fall $s = 2\mu\text{m}$.

Für die Berechnung der wichtigsten elektromagnetischen Parameter der Kapazität, der Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} , des dielektrischen Verlustwinkels $\tan\delta_{\text{STO}}$ sowie der Abstimmbarkeit n einer solchen Kapazität bedient man sich eines Modells paralleler Kapazitäten [Vend99], deren Summation die Gesamtkapazität des Bauelements ergibt:

$$(Gl. 46) \quad C_{PC} = C_{\text{STO}} + C_{\text{Saphir}} + C_{\text{Luft}}$$

Dabei wird im Falle der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten planaren Kapazitäten der Anteil der nur 20nm dicken CeO_2 -Pufferschicht gegenüber der $\sim 500\text{nm}$ dicken SrTiO_3 -Schicht mit der weitaus größeren Dielektrizitätskonstanten ($\epsilon_{\text{STO}} \gg \epsilon_{\text{CeO}}$) vernachlässigt. Für die anderen Einzelkapazitäten kann unter der Voraussetzung $h_{\text{STO}} \ll s$ folgende Abschätzung gemacht werden [Vend99b]:

$$(Gl. 47) \quad C_{Saphir} = \epsilon_0 \cdot \epsilon_{Saphir} \cdot \frac{1}{\pi} \cdot \ln\left(\frac{16 \cdot h_{Saphir}}{\pi \cdot s}\right) \cdot d$$

$$(Gl. 48) \quad C_{Luft} = \epsilon_0 \cdot \epsilon_{Luft} \cdot \frac{2}{\pi} \cdot \ln\left(\frac{4 \cdot l}{s}\right) \cdot d$$

$$(Gl. 49) \quad C_{STO,PC} = \epsilon_0 \epsilon_{STO} \cdot \frac{\pi}{4 \cdot (\ln 2 + (\pi s / 4 h_{STO}))} \cdot d$$

mit den Dielektrizitätskonstanten der jeweiligen Materialien ϵ_{STO} , ϵ_{Saphir} und ϵ_{Luft} , der Spaltbreite s der Kapazität, den Schichtdicken h und H des $SrTiO_3$ und des Saphirs, der Breite d der Elektroden sowie der Länge l der Kontaktelektroden (wie in Abb. 30 skizziert).

Die Berechnung der dielektrischen Verluste kann mittels der Verteilung der Gesamtenergie in den drei parallelen Kapazitäten durchgeführt werden [Ott00]. Dabei gilt für die gesamte, in der Kapazität gespeicherte Energie nach dem Modell der parallelen Kapazitäten:

$$(Gl. 50) \quad E_{PC} = E_{STO} + E_{Saphir} + E_{Luft} = \frac{C_{STO} U^2}{2} + \frac{C_{Saphir} U^2}{2} + \frac{C_{Luft} U^2}{2} = \frac{C_{PC} U^2}{2}.$$

Damit folgen für die relative Verteilung der elektromagnetischen Gesamtenergie auf die Einzelkapazitäten folgende Füllfaktoren F :

$$(Gl. 51) \quad F_{STO} = \frac{E_{STO}}{E_{PC}} = \frac{C_{STO,PC}}{C_{PC}}$$

$$(Gl. 52) \quad F_{Saphir} = \frac{E_{Saphir}}{E_{PC}} = \frac{C_{Saphir}}{C_{PC}}$$

$$(Gl. 53) \quad F_{Luft} = \frac{E_{Luft}}{E_{PC}} = \frac{C_{Luft}}{C_{PC}}$$

Die Gesamtverluste in der Kapazitätsstruktur setzen sich gemäß der Verteilung der elektromagnetischen Energie aus den Einzelverlusten zusammen:

$$(Gl. 54) \quad \tan \delta_{PC} = (F_{STO} \cdot \tan \delta_{STO}) + (F_{Saphir} \cdot \tan \delta_{Saphir}) + (F_{Luft} \cdot \tan \delta_{Luft})$$

Da Verlustwinkel in Luft $\tan \delta_{Luft} \approx 0$ und in Saphir $10^{-8} < \tan \delta_{Saphir} < 10^{-6}$ vernachlässigbar klein gegenüber den erwarteten Gesamtverlusten im Bereich von $\tan \delta_{gesamt} \approx 10^{-2}$ sind, lässt sich (Gl. 54) näherungsweise vereinfachen:

$$(Gl. 55) \quad \tan \delta_{STO} \approx \frac{1}{F_{STO}} \tan \delta_{PC} = \frac{C_{PC}}{C_{STO}} \tan \delta_{PC}.$$

Damit lassen sich die dielektrischen Verluste in den $SrTiO_3$ -Schichten aus den gemessenen Werten $C_{STO,PC}$, C_{PC} sowie $\tan \delta_{PC}$ direkt berechnen.

4 Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die im Rahmen dieser Arbeit erzielten Resultate präsentiert und diskutiert. Dabei wird in Kapitel 4.1 zunächst auf die strukturellen und dielektrischen Eigenschaften der SrTiO_3 -Schichten eingegangen. Die Eigenschaften werden analysiert, mögliche Korrelationen zwischen den verschiedenen Eigenschaften werden aufgezeigt und auf der Basis eines theoretischen Modells erklärt. In Kapitel 4.2 werden die Ergebnisse der Messungen der nichtlinearen Mikrowelleneigenschaften der SrTiO_3 -Schichten vorgestellt und im Rahmen der strukturellen und dielektrischen Eigenschaften der Filme diskutiert. In Kapitel 4.3 wird dann die Integration der SrTiO_3 -Schichten in Teststrukturen (Varaktoren) unterschiedlichen Designs demonstriert und ein Vergleich der Geometrien durchgeführt. Hierbei wird insbesondere ein Modell entwickelt, das die dielektrischen Eigenschaften der unterschiedlichen Geometrien beschreibt, und es wird demonstriert, dass eine Optimierung des Designs zu signifikanten Verbesserungen der Bauelementeigenschaften führt.

4.1 Strukturelle und dielektrische Eigenschaften der SrTiO_3 -Schichten

Die Herstellung der im Rahmen dieser Arbeit auf 2“ Saphirsubstrate gesputterten SrTiO_3 -Schichten wurde bereits in Kapitel 3.1 beschrieben.

Proben -nr.	Heiztem- peratur T_H [°C]	Gitterkonstante a [Å] (110)/(111)- SrTiO_3	Intensität A_n [deg.cps] (110)/(111)- SrTiO_3	Dicke [nm]	ϵ_{STO} (77K)	$\tan\delta_{\text{STO}}$ (77K)
#1	650	3.965 / -	580 / 0	-	158	$8.2 \cdot 10^{-3}$
#2	695	3.968 / -	812 / 0	-	215	$1.04 \cdot 10^{-2}$
#3	728	3.965 / -	574 / 0	-	127	$6.4 \cdot 10^{-3}$
#4	782	3.973 / -	368 / 0	-	-	-
#5	830	3.946 / -	217 / 0	-	-	-
#6	837	3.925 / -	- / 0	435	-	-
#7	845	3.932 / -	536 / 0	-	-	-
#8	849	3.928 / -	752 / 0	383	-	-
#9	858	3.928 / 3.943	838 / 63	451	319	$1.68 \cdot 10^{-2}$
#10	861	3.925 / 3.977	877 / 123	-	521	$1.58 \cdot 10^{-2}$
#11	867	3.934 / 3.961	909 / 141	-	414	$1.35 \cdot 10^{-2}$

Tabelle 3: Probenliste und einige ausgewählte Eigenschaften der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten SrTiO_3 -Schichten. Alle Proben wurden bei einem Gasdruck von $p=4\text{Pa}$, einem Ar/O_2 -Fluß von $66\text{sccm}/10\text{sccm}$, einer rf-Sputterleistung von $P=260\text{W}$ und einer Gesamtputterdauer von $t = 3\text{h}$ auf 2“ CeO_2 -gepuffertem r-cut-Saphir der Dicke $H = 0.5\text{mm}$ hergestellt.

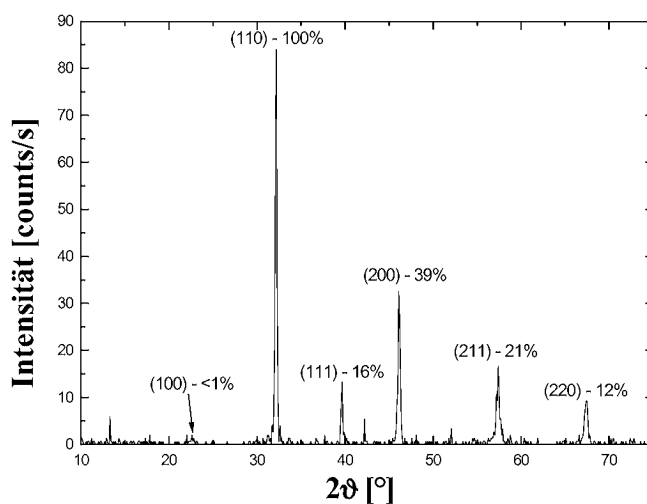
Tabelle 3 gibt einen Überblick über die Depositionsparameter und einige ausgewählte Eigenschaften der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Proben. Die Nummerierung der Proben erfolgt zur Einordnung der Proben im weiteren Verlauf der Arbeit.

Vor der Bestimmung der dielektrischen (Kapitel 4.1.2 - 4.1.4) sowie der nichtlinearen (siehe Kapitel 4.2) Eigenschaften der SrTiO_3 -Schichten wird in Kapitel 4.1.1 das kristalline Wachstum dieser Filme überprüft.

Für die Bestimmung der dielektrischen Eigenschaften wurden die SrTiO_3 -Filme in planare Testkapazitätsstrukturen (siehe Kapitel 3.3.6) integriert und deren Kapazität C sowie Verluste $\tan\delta$ mit Hilfe des in Kapitel 3.3.4 beschriebenen Dielektrizitätsmessplatzes temperatur- sowie spannungsabhängig gemessen. Die Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} , der Verlust der Schicht $\tan\delta_{\text{STO}}$ sowie die Abstimmbarkeit der Dielektrizitätskonstante n wurden mit Hilfe der in Kapitel 3.3.6 vorgestellten Modelle paralleler Kapazitäten für die einzelnen Kapazitätsbeiträge von Luft, Substrat, Pufferschicht sowie der SrTiO_3 -Schicht berechnet.

4.1.1 Kristalline Eigenschaften

Zur Bestimmung ihrer kristallographischen Eigenschaften wurden die SrTiO_3 -Schichten mit Hilfe der Röntgendiffraktometrie untersucht. Dabei wurde besonders nach den epitaktischen Orientierungen der kubischen SrTiO_3 -Einheitszelle gesucht, zum Beispiel der (100)-, (110)-, (111)- und (211)-Orientierung.



2θ [°]	theo. Int. %	h	k	l
22.783	12	1	0	0
32.424	100	1	1	0
39.984	30	1	1	1
46.483	50	2	0	0
52.357	3	2	1	0
57.794	40	2	1	1
67.804	25	2	2	0

Abb. 32 Röntgenspektrum des polykristallinen SrTiO_3 -Targets in Bragg-Brentano-Geometrie ($\vartheta = 2\omega$) mit einer prozentualen Angabe der gemessenen relativen Intensitätsverhältnisse der Röntgenreflexe, normiert auf den höchsten Reflex, den (110)-Reflex. Nebstehend befindet sich eine Tabelle der wichtigsten Röntgenreflexe inklusive der theoretischen relativen Intensität (in Prozent) und des Gitterindexes.

Eine zunächst durchgeführte Eichmessung an einem polykristallinen SrTiO_3 -Target (siehe Abb. 32) zeigt die Positionen sowie die relativen Intensitäten der einzelnen Röntgenreflexe

des Strontiumtitanats. Dabei ist zu erkennen, dass der Röntgenreflex der (100)-Orientierung aufgrund seiner geringen relativen Intensität von lediglich 12 % nicht einfach nachzuweisen ist. Daher wurde zur Detektion dieser Orientierung bei den nachfolgenden Messungen der epitaktischen SrTiO_3 -Filme auf den (200)-Röntgenreflex zurückgegriffen. Während die experimentell bestimmten Winkelpositionen der unterschiedlichen Reflexe sehr gut mit den theoretischen Werten übereinstimmen (Abweichung $\Delta\theta < 0.05^\circ$), sind die Abweichungen der gemessenen Intensitäten von den theoretischen Werten sehr groß. Das kann auf unterschiedlichste Einflüsse (Verspannungen, Morphologie, etc.) zurückzuführen sein. Für die weitere Auswertung, zum Beispiel der Phasenanteile, wird daher der theoretische Wert zugrunde gelegt.

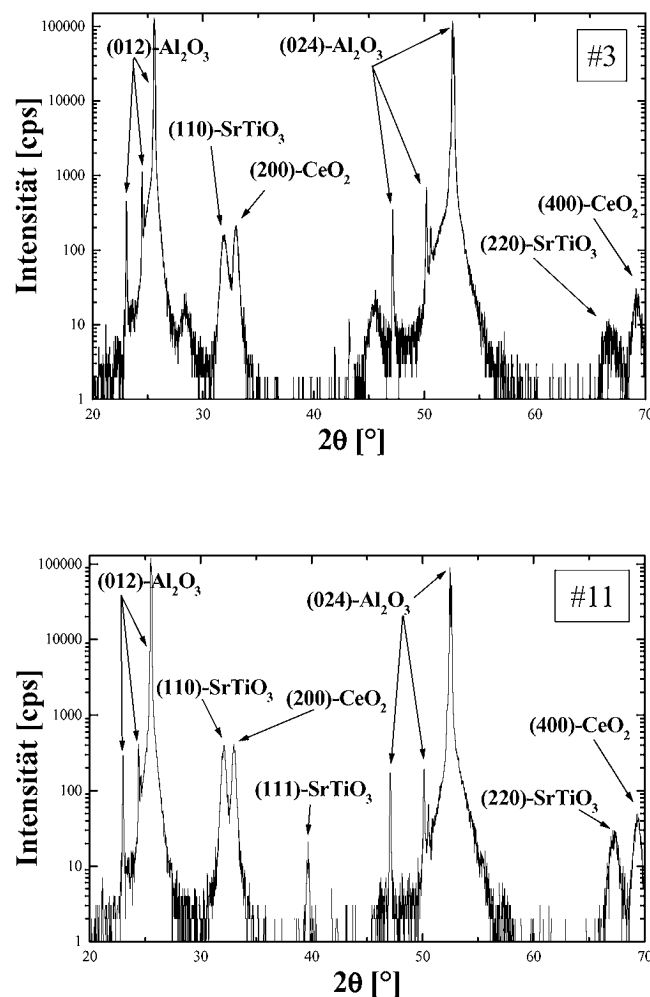


Abb. 33 Logarithmische Auftragung der Röntgenspektren der Proben #3 und #11. Die unterschiedlichen Phasen sind indiziert, im Falle der extrem starken Saphirreflexe treten jeweils neben den $k_{\alpha 1}$ - die $k_{\alpha 2}$ - und k_{β} -Reflexe auf.

Abb. 33 zeigt nun zwei Beispiele von Röntgenspektren von SrTiO_3 -Filmen auf $\text{CeO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$. In beiden Fällen sind die (110)-Röntgenreflexe der (110)-Orientierung des SrTiO_3 -Films zu erkennen. Für die Probe #11 tauchen jedoch noch (111)-Röntgenreflexe der (111)-

Orientierung auf. D. h. während in beiden Proben (110)-orientierte Anteile auftauchen, ist lediglich in der Probe #11 (111)-Orientierung detektierbar. Zusätzliche, nicht-epitaktische (untexturierte) und wahrscheinlich polykristalline Anteile lassen sich mit dieser Messung nicht bestimmen.

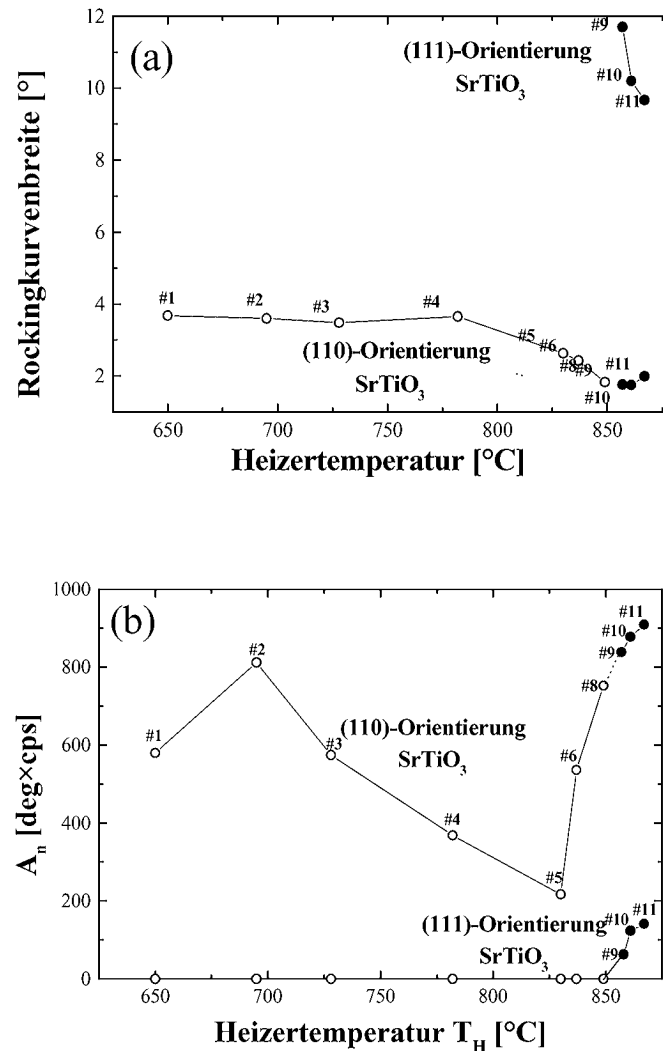


Abb. 34 (a) Orientierung und kristalline Güte sowie (b) normierte Flächenintegrale A_n (mit $I_{rel}(110) = 1$ und $I_{rel}(111) = 0.3$) unter den Rockingkurven der zwei in den hergestellten Schichten auftretenden SrTiO_3 -Orientierungen als Funktion der Heizertemperatur. Das normierte Flächenintegral repräsentiert ein Maß für den jeweiligen Phasenanteil.

Ein ganz entscheidender Parameter für die Kristallinität der SrTiO_3 -Filme auf dem vorgegebenen Substrat ist die Depositionstemperatur. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit die Abhängigkeit des Wachstums von der Heizertemperatur untersucht. Um stets die gleichen Ausgangsbedingungen für das Wachstum der Filme zu haben, wurde jeweils vor der SrTiO_3 -Deposition eine ca. 30 nm dicke CeO_2 -Pufferschicht mittels eines Standardverfahrens (siehe Kapitel 3.1.2) abgeschieden.

Abb. 34 (a) zeigt die Abhängigkeiten kristalliner Eigenschaften der epitaktisch aufgewachsenen SrTiO_3 -Anteile von der Substrattemperatur. Zu sehen ist zunächst eine mit steigender Heizertemperatur zunehmende Homogenität der epitaktischen bzw. texturierten Schichtanteile, die sich in den schmaler werdenden Rockingkurven der Orientierungen zeigt.

Bei einer Heizertemperatur von ca. 850°C ist ein Minimum der Rockingkurvenbreite der (110)-Orientierung des SrTiO_3 zu finden. Oberhalb dieser Temperatur nimmt die kristalline Qualität (Textur) wieder leicht ab, d. h. die Rockingkurvenbreite der (110)-Kristallorientierung wird minimal größer. Zusätzlich wird eine (111)-Textur mit extrem breiten Rockingkurven sichtbar.

Um Aufschluss über den realen Anteil der Phasen in den SrTiO_3 -Schichten zu erhalten, sind in Abb. 34 (b) die auf eine relative Intensität:

$$(Gl. 56) \quad A_n = \frac{1}{I_{rel}} \cdot \int_0^{2\pi} I(\theta) d\theta$$

normierten Flächenintegrale A_n unterhalb der Rockingkurven der einzelnen SrTiO_3 -Reflexe in Abhängigkeit der Heizertemperatur des Abscheidens aufgetragen. Bei einer Depositionstemperatur von ca. 700°C ist ein Maximum der (110)-Phase zu erkennen. Bei höheren Temperaturen nimmt der Anteil dieser Phase zunächst ab. Interessanterweise beginnt mit dem Auftreten der (111)-Phase des SrTiO_3 bei ca. 850°C Heizertemperatur wieder ein steiler Anstieg des Anteils der (110)-Phase.

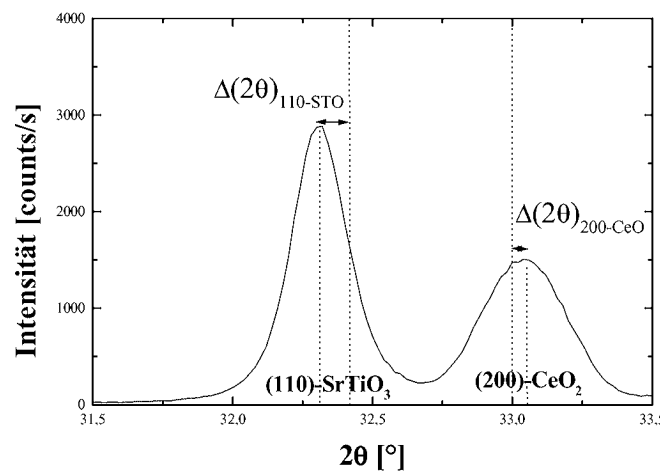


Abb. 35 Abweichungen $\Delta(2\theta)_{110\text{-STO}}$ und $\Delta(2\theta)_{200\text{-CeO}}$ der Peakpositionen der Röntgenreflexe (110)- SrTiO_3 sowie (200)- CeO_2 eines $\text{SrTiO}_3/\text{CeO}_2$ -Schichtpakets auf Saphir von den theoretisch erwarteten Peakpositionen. Die Messungen wurden in Bragg-Brentano-Geometrie durchgeführt, die experimentellen Winkelwerte mittels des (012)-Saphirpeaks korrigiert.

Einen Hinweis auf Verspannungen oder Verzerrungen des Kristallgitters des epitaktischen SrTiO_3 -Filmanteils liefert die Abweichung der Position der Röntgenreflexe von den

theoretisch erwarteten Winkelwerten (siehe Tabelle in Abb. 32). Ebenso kann die CeO₂-Pufferschicht auf Verspannungen untersucht werden. Abb. 35 zeigt einen Ausschnitt des Röntgenspektrums (Bragg-Brentano-Geometrie) eines SrTiO₃/CeO₂-Schichtpakets auf Saphir. Der (110)-Reflex des SrTiO₃ sowie der (200)-Reflex des CeO₂ sind im Vergleich zu den theoretischen Peakpositionen ($2\theta_{110\text{-STO}} = 32.424^\circ$, $2\theta_{200\text{-CeO}} = 33.077^\circ$) wiedergegeben.

Aus den experimentell bestimmten Winkelpositionen der unterschiedlichen Reflexe lassen sich nun die Gitterkonstanten der Phasenanteile und deren Abweichungen, die zum Beispiel durch Gitterverspannungen im Film verursacht werden, bestimmen. Aus den Messdaten der θ - 2θ -Röntgenscans ergeben sich mittels der umgeformten Braggbedingung (Gl. 41) für den Gitterebenenabstand:

$$(Gl. 57) \quad d = \frac{n \cdot \lambda}{2 \cdot \sin \theta}.$$

Unter der Annahme eines kubischen Gitters mit symmetrischer Gitterverspannung für die epitaktischen CeO₂- und SrTiO₃-Schichten können hieraus die Gitterkonstanten der Schichten aus den Peakpositionen der Reflexe angenähert werden:

$$(Gl. 58) \quad a(\text{CeO}_2) = \frac{2 \cdot \lambda}{2 \cdot \sin \theta_{(200)}} = \frac{\lambda}{\sin \theta_{(200)}},$$

$$(Gl. 59) \quad a(\text{SrTiO}_3) = \sqrt{2} \cdot \frac{\lambda}{2 \cdot \sin \theta_{(110)}} = \frac{\lambda}{\sqrt{2} \cdot \sin \theta_{(110)}}.$$

Abb. 36 (a) zeigt zunächst einen Vergleich der Gitterkonstanten a der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten CeO₂- und SrTiO₃-Schichten als Funktion der Heizertemperatur mit den theoretischen Gitterkonstanten für nichtverspannte CeO₂- und SrTiO₃-Einkristalle. Zur besseren Beurteilung der Verspannung in Abb. 36 (b) wurde die relative Gitterverspannung:

$$(Gl. 60) \quad (\Delta a / a) = \frac{a_{\text{theoretisch}} - a_{\text{experimentell}}}{a_{\text{theoretisch}}}$$

als Funktion der Heizertemperatur aufgetragen. Es zeigt sich, dass die relative Gitterverspannung des CeO₂-Gitters mit $(\Delta a/a)_{\text{CeO}} < 0.5\%$ relativ klein ist. Für die meisten Proben gilt sogar $(\Delta a/a)_{\text{CeO}} < 0.1\%$. Dieses Ergebnis weist deutlich auf ein nahezu optimales Wachstum der CeO₂-Pufferschicht auf das Saphirsubstrat hin. Frühere Untersuchungen [Vaup98] zeigen, dass nach einigen Monolagen Defekte im CeO₂ zu einer Entspannung der Pufferschicht führen. Die Entspannung durch Defekte ist allerdings auch für die schlechtere Textur der CeO₂-Schichten mit $\Delta\omega \approx 1^\circ$ verantwortlich. Auffällig ist, dass alle CeO₂-Pufferschichten, die nach der Herstellung zum Zwecke der SrTiO₃-Deposition auf über $T_{\text{Heizer}} > 830^\circ\text{C}$ erwärmt wurden, eine Abweichung der CeO₂-Gitterkonstanten vom theoretischen Wert von $(\Delta a/a)_{\text{CeO}} < 0.1\%$ aufweisen. Die nachträgliche Erwärmung scheint also zu einer zusätzlichen Relaxation der CeO₂-Pufferschichten zu führen. Ähnliche Effekte bei nachträglichen Tempervorgängen von gesputterten CeO₂-Schichten wurden in der Literatur gefunden [Wang93].

Die Abweichung der relativen Gitterverspannung der SrTiO_3 -Schichten vom theoretisch erwarteten Wert ist für alle untersuchten Schichten mit $0.5\% < (\Delta a/a)_{\text{STO}} < 2\%$ deutlich größer als die relative Gitterverspannung der CeO_2 -Pufferschichten.

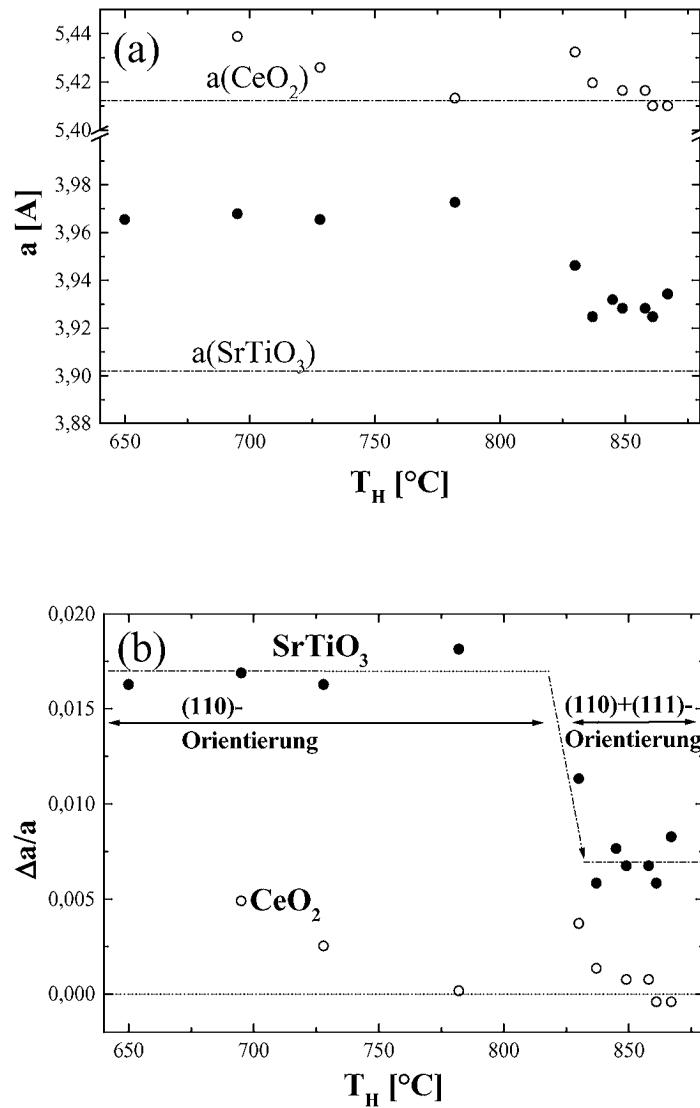


Abb. 36 (a) Gitterkonstante a sowie (b) relative Gitterverspannung $(\Delta a/a)$ der gesputterten CeO_2 - und SrTiO_3 -Schichten als Funktion der Heizertemperatur T_H während des SrTiO_3 -Depositionsprozesses. Die gestrichelten Linien in (a) markieren die theoretischen Gitterkonstanten für CeO_2 und SrTiO_3 , während sie in (b) den idealisierten Verlauf der Gitterverspannung für SrTiO_3 und die Nulllinie wiedergeben. Zusätzlich sind in (b) die Temperaturbereiche markiert, bei denen lediglich (110)- bzw. (110)- und (111)-orientiertes SrTiO_3 aufwächst.

Dabei lässt sich das Verhalten der Schichten in zwei Temperaturbereiche unterteilen. Im Depositionstemperaturbereich von $650^\circ\text{C} < T_{\text{Heizer}} < 800^\circ\text{C}$ ist die relative Gitterverspannung konstant und mit Werten von $(\Delta a/a)_{\text{STO}} < 1.7\% \pm 0.1\%$ sehr groß. Im Temperaturbereich $T_H \approx 825^\circ\text{C}$ nimmt sie rapide um mehr als 50% ab. Im Depositionstemperaturbereich von $835^\circ\text{C} <$

$T_{\text{Heizer}} < 870^\circ\text{C}$ ist die Abweichung mit $(\Delta a/a)_{\text{STO}} \approx 0.6\%$ dann wiederum nahezu konstant und annähernd vergleichbar mit den maximalen Verspannungen im CeO_2 . Die Verspannungen innerhalb des Kristallgitters in der SrTiO_3 -Schicht sind somit für Proben, die bei höheren Temperaturen abgeschieden werden, deutlich geringer, es wachsen spannungsfreiere SrTiO_3 -Schichten. Interessanterweise entspricht der Temperaturbereich spannungsfreierem SrTiO_3 -Wachstums in etwa dem Bereich, in dem das Wachstum der zusätzlichen (111)-Orientierung des SrTiO_3 einsetzt und detektiert wird (siehe Abb. 34). Das Auftreten der (111)-Orientierung scheint also zu einer Relaxation der Gitterverspannungen des SrTiO_3 -Kristallgitters zu führen.

Die Korrelationen zwischen den untersuchten kristallinen Eigenschaften der SrTiO_3 -Schichten und ihren dielektrischen bzw. nichtlinearen Eigenschaften werden in den Kapiteln 4.1.5 bzw. 4.2.2 näher untersucht werden.

4.1.2 Dielektrizitätskonstante

Die Bestimmung der Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} basiert auf (i) der Messung der Gesamtkapazität C_{PC} der planaren Kapazitätsgeometrie sowie (ii) einer Messung einer identischen Kapazität ohne SrTiO_3 , aus der sich die Beiträge der Luft (C_{Luft}) und des Saphirs (C_{Saphir}) ableiten lassen. Zur Bestimmung der Anteile C_{Luft} , C_{Saphir} sowie verbleibender Beträge, Streukapazitäten von Zuleitungen, Probenhalter und Probenumgebung wurden auf CeO_2 -gepufferten Saphirsubstrate planare Referenzkapazitäten mit unterschiedlicher Spaltbreite $s = 2\mu\text{m} \dots 10\mu\text{m}$ hergestellt und im Dielektrizitätsmessplatzes (siehe Kapitel 3.3.4) charakterisiert.

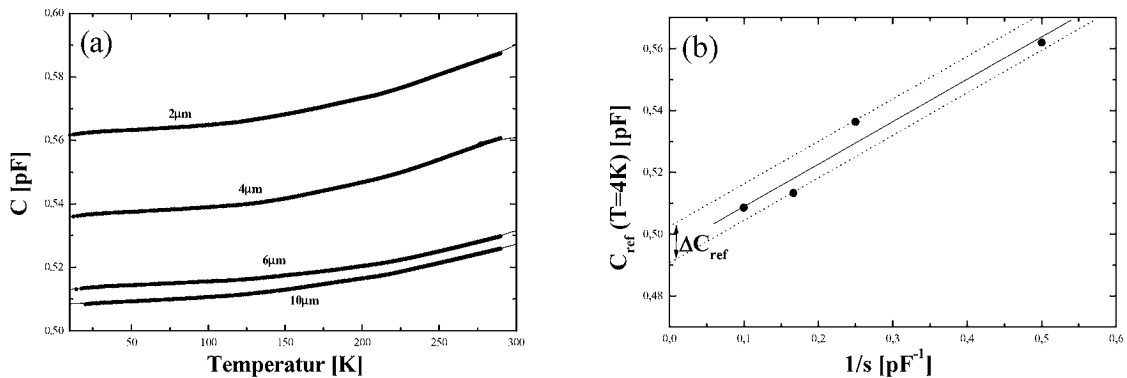


Abb. 37 (a) Temperaturabhängigkeit von planaren Standardkapazitäten ohne SrTiO_3 auf der Basis CeO_2 -gepufferten Saphirsubstrate verschiedener Spaltbreite s . Die Messwerte (Punkte) wurden durch Polynome neunter Ordnung angenähert (Linien), um eine temperaturabhängige Beschreibung $C_{\text{ref}}(T)$ zu ermöglichen. (b) $C_{\text{ref}}(T=4\text{K})$ als Funktion der inversen Kapazitätsspaltbreite $1/s$. Die durchgezogene Linie repräsentiert die erwartete lineare Abhängigkeit $C_{\text{ref}} = C_0(T) + C_1/s$. Die gestrichelten Linien deuten die Fehlerabschätzung $\Delta C_{\text{ref}} \approx 0.012\text{pF}$ an.

Abb. 37 zeigt die temperaturabhängigen Referenzmessungen der Kapazität C_{ref} der Referenzkapazitäten unterschiedlicher Spaltbreite. Dabei ist eine Abnahme der Kapazität mit zunehmender Spaltbreite s der planaren Kapazitätsgeometrie entsprechend der theoretischen Erwartung $C \propto 1/s$ zu beobachten. Der Fehler bei der Bestimmung von C_{ref} ergibt sich zu $\Delta C_{\text{ref}} \approx 0.012 \text{ pF}$.

Abb. 38 zeigt nun die Bestimmung des SrTiO_3 -Beitrags zur Gesamtkapazität einer planaren Standardkapazität. Aus der Messung der Gesamtkapazität wird mittels (Gl. 61) der SrTiO_3 -Beitrag berechnet :

$$(Gl. 61) \quad C_{\text{STO}} = C_{\text{PC}} - (C_{\text{Luft}} + C_{\text{Saphir}}) = C_{\text{PC}} - C_{\text{ref}}.$$

Die aus dieser Berechnung resultierende Teilkapazität C_{STO} der Probe #11 zeigt nun eine der Gesamtkapazität ähnelnde Temperaturabhängigkeit, ist jedoch wesentlich kleiner als die Gesamtkapazität.

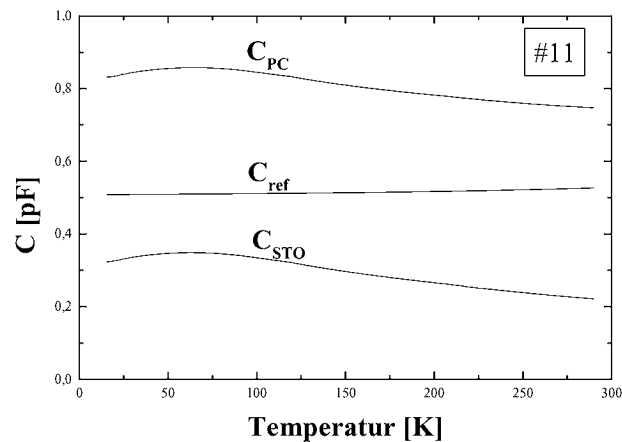


Abb. 38 Temperaturabhängige Bestimmung des Kapazitätsbeitrags C_{STO} des SrTiO_3 -Films der SrTiO_3 -Kapazität #11 aus den gemessenen Beiträgen C_{PC} und C_{ref} . Die Spaltbreite beträgt jeweils $s = 2 \mu\text{m}$.

Aus (Gl. 49) ergibt sich nun aus C_{STO} und bei Kenntnis der geometrischen Abmessung der Kapazitätsstruktur die Dielektrizitätskonstante des SrTiO_3 -Films:

$$(Gl. 62) \quad \epsilon_{\text{STO}} = C_{\text{STO}} * \frac{4[\ln 2 + ((\pi \cdot s)/(4 \cdot h_{\text{STO}}))]}{\epsilon_0 \cdot \pi \cdot d}.$$

Dabei ist s die Spaltbreite der Kapazität, h_{STO} die Schichtdicke des SrTiO_3 , d die Breite der Elektroden und l die Länge der Kontaktelektroden (siehe Abb. 30 in Kapitel 3.3.6).

Abb. 39 zeigt die mit Hilfe von (Gl. 62) kalkulierte Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} einer der Proben als Funktion der Temperatur für verschiedene Spaltbreiten s . Es zeigt sich dabei, dass die Dielektrizitätskonstante zu kleinen Spaltbreiten hin immer mehr unterschätzt wird. Dies liegt wahrscheinlich an der für (Gl. 62) vorausgesetzten Annahme $h_{\text{STO}} \ll s$ (Voraussetzung für die Anwendbarkeit des „conformal mapping“), die für derart kleine Spaltbreiten nicht

mehr erfüllt wird. Die genaueste Bestimmung der Dielektrizitätskonstante der dünnen SrTiO₃-Schichten sind aufgrund dieser Aspekte für große Spaltbreiten zu erwarten, da die Bedingung $h_{\text{STO}} \ll s$ dort am besten erfüllt ist. Auf der anderen Seite ist für große Spaltbreiten eine wesentliche niedrigere Kapazität $C \propto 1/s$ zu erwarten. Angesichts der Tatsache, dass die Kapazität der Referenzkapazität (ohne SrTiO₃) schon bei Spaltbreiten von 2 μm mehr als 50% der Gesamtkapazität ausmacht, d. h. $C_{\text{STO}} < C_{\text{ref}}$, nimmt die Messgenauigkeit für die Bestimmung von ϵ mit der Spaltbreite drastisch ab. Daher ist trotz der Unterschätzung der ϵ -Werte für kleine Spaltbreiten für viele Messungen eine Spaltbreite von $s = 2 \mu\text{m}$ verwandt worden.

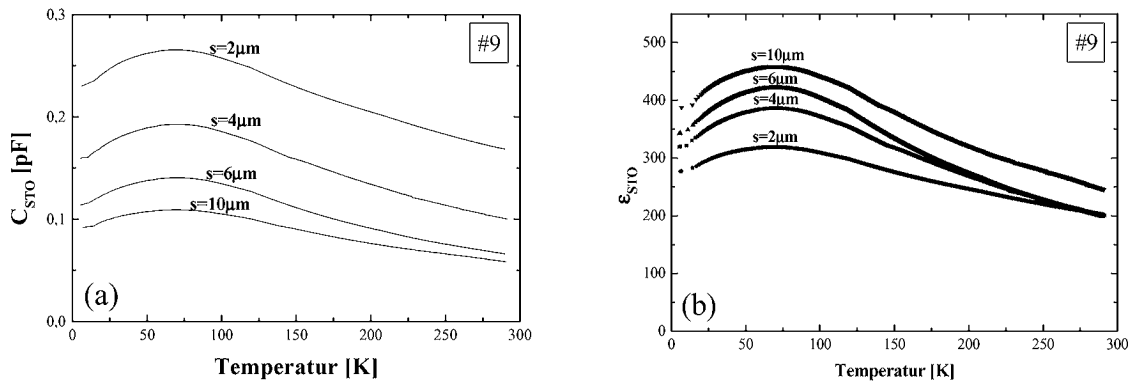


Abb. 39 (a) Temperaturabhängigkeit der Teilkapazität C_{STO} und (b) der mit Hilfe von (Gl. 62) berechneten Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} der Probe #9 für verschiedene Breiten des Kapazitätsspalts s der planaren Standardkapazitätsgeometrie.

Abb. 40 zeigt den Vergleich der Temperaturabhängigkeit der SrTiO₃-Teilkapazität C_{STO} sowie der daraus kalkulierten Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} von sechs unterschiedlichen SrTiO₃-Schichten. Die Spaltbreite der Teststruktur beträgt in allen Fällen $s = 2 \mu\text{m}$.

Die Kurvenverläufe sowie die Positionen der Maxima ähneln sich für alle vermessenen Proben, nur die absolute Höhe sowie die Steigungen der Kurven sind stark voneinander verschieden. Diese Tatsache wird in Kapitel 4.1.5 noch näher untersucht und diskutiert werden.

Der Temperaturverlauf der Kurven soll jedoch hier kurz diskutiert werden. Ideales Curie-Weiss-Verhalten ist für SrTiO₃-Kristalle zu erwarten. Dazu wurde im Rahmen dieser Arbeit eine planare Standardkapazität direkt auf einem (110)-orientiertem SrTiO₃-Substrat strukturiert und vermessen.

Abb. 41 zeigt einen Vergleich der Temperaturabhängigkeit dieser planaren Kapazität mit Literaturdaten. Im überwiegenden Temperaturbereich (in unserem Fall $T > 40\text{K}$) zeigt sich dabei ein linearer Verlauf entsprechend dem Curie-Weiss-Gesetz (siehe (Gl. 17) in Kapitel 2.3):

$$(Gl. 63) \quad C_{\text{paraelektrisch}} \propto \epsilon_{\text{paraelektrisch}} = \frac{A}{T - T_C}.$$

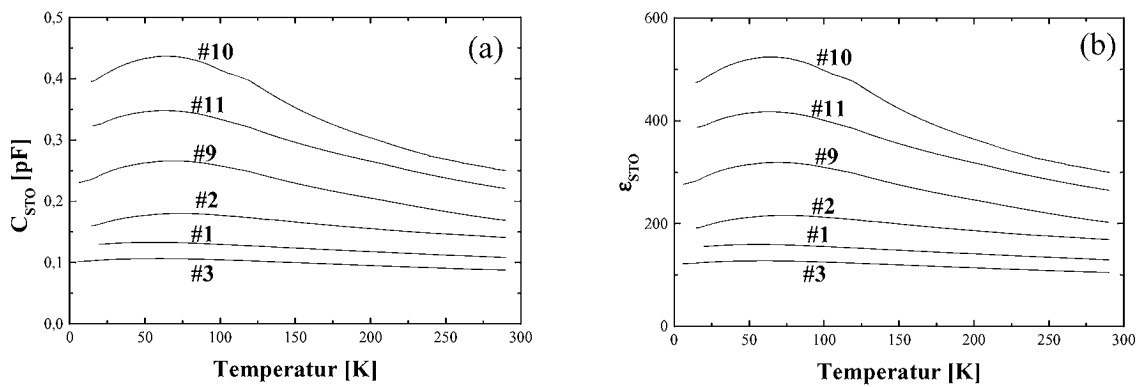


Abb. 40 (a) Kapazität C_{STO} sowie (b) daraus resultierende Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} als Funktion der Temperatur für sechs unterschiedliche SrTiO₃-Filme. Die Spaltbreite betrug in allen Fällen $s = 2\mu\text{m}$.

Wir erhalten somit ein Curie-Weiss-Verhalten für die planare Geometrie. Die Curie-Temperatur von $T_C \approx 25\text{K}$ ist sicherlich größer als die theoretisch vorausgesagte Curie-Temperatur von $T < 0\text{K}$ für SrTiO₃, sie ist allerdings vergleichbar zu experimentell bestimmten T_C -Werten der Literatur von $T_C \approx 35\text{K}$ [Müll79]. Dieser Erhöhung der T_C -Werte kann zum Beispiel durch Verunreinigungen im SrTiO₃ oder Redeponat bei der Strukturierung verursacht werden.

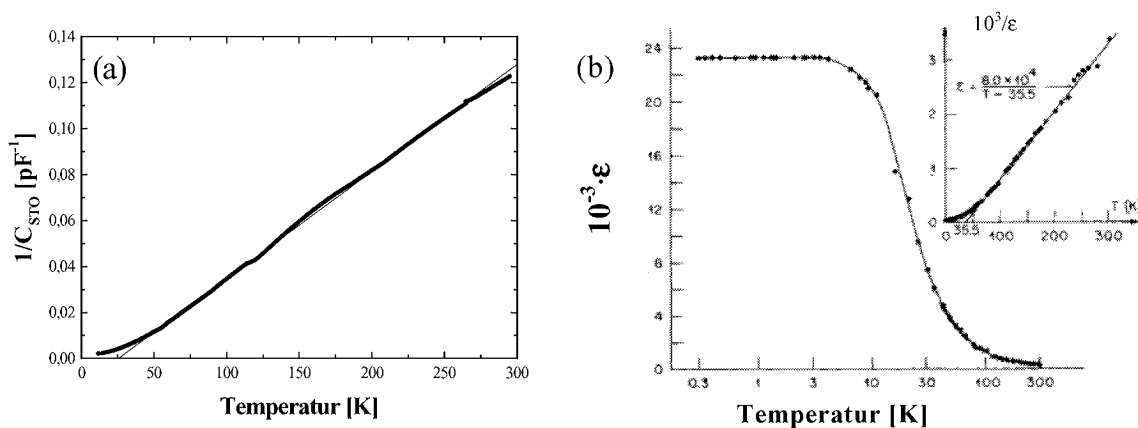


Abb. 41 Überprüfung des Curie-Weiss-Gesetzes anhand (a) einer planaren Standardteststruktur auf einem SrTiO₃-Einkristall im Rahmen dieser Arbeit sowie (b) aus der Literatur [Müll79] anhand der Temperaturabhängigkeit der inversen Kapazität $1/C_{STO}$ bzw. der inversen Dielektrizitätskonstante $1/\epsilon_{STO}$.

Die Auftragung der reziproken Kapazität unserer SrTiO₃-Filme zeigt erstaunlicherweise wesentlich kleinere T_C -Werte (siehe Abb. 42). Auch ist im Unterschied zu den SrTiO₃-Einkristallen das Curie-Weiss-Gesetz (Gl. 63) erst ab Temperaturen von $T > 120\text{K}$ erfüllt. Ähnliche Geltungsbereiche des Curie-Weiss-Gesetzes für SrTiO₃-Filme sind in der Literatur bekannt (siehe z.B. [Prud97]). Die Abweichung von dem theoretisch erwarteten Curie-Weiss-Gesetz beginnt schon weit von der Temperatur $T(C_{\text{max}})$ entfernt, bei der die Teilkapazität C_{STO}

ihren Maximalwert erreicht und wird zu tiefen Temperaturen immer größer. Es ist daher nicht davon auszugehen, dass bei $T(C_{\max})$ ein scharfer ferroelektrischer Phasenübergang stattfindet.

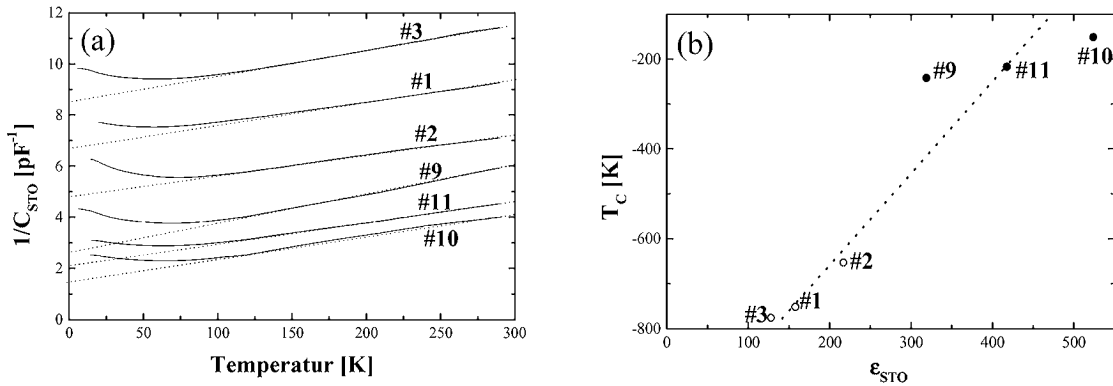


Abb. 42 (a) Überprüfung des Curie-Weiss-Gesetzes anhand der Temperaturabhängigkeit der inversen Kapazität $1/C_{\text{STO}}$. Bei Temperaturen $T > 120\text{K}$ ist das Gesetz erfüllt. Die aus dem linearen Fit abgeleiteten Curie-Temperaturen (in (b) als Funktion der maximalen Dielektrizitätskonstante $\epsilon_{\max}$ aufgetragen) sind jedoch unphysikalisch klein.

In Abb. 42 (b) ist die errechnete Curie-Temperatur T_C der untersuchten SrTiO_3 -Schichten als Funktion der maximalen Dielektrizitätskonstante $\epsilon_{\text{STO,max}}$ aufgetragen. Es zeigt sich, dass die Curie-Temperatur zum einen extrem niedrig, deutlich unter 0K, ist, zum anderen steigt T_C mit wachsender maximaler Dielektrizitätskonstante von $T_C \approx -800\text{K}$ auf ca. -170K . Die sehr niedrigen, unphysikalischen Werte für die Curie-Temperatur T_C der untersuchten Filme kann mehrere Ursachen haben. So könnte ein Domänenpinning (siehe Kapitel 2.5.2) zu einer Verminderung der Polarisation der Filme führen. Denselben polarisationsmindernden Effekt hätten Spannungen in den Schichten. Beides würde sich damit in einem flacheren Anstieg der Dielektrizitätskonstanten und demzufolge in niedrigeren Curie-Temperaturen bemerkbar machen. Weiterhin wäre es möglich, dass die SrTiO_3 -Filme neben ferroelektrischem Material auch einen dielektrischen, weitgehend temperaturabhängigen Anteil enthalten. Dies würde im Fit automatisch zu einer scheinbaren Reduktion der Curie-Temperatur führen. Wie Abb. 42 (b) weiterhin zeigt, teilen sich die SrTiO_3 -Filme auch bezüglich ihrer Curie-Temperatur in zwei voneinander getrennte Bereiche auf: Die relaxierten Filme mit kleiner Gitterverspannung $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$ weisen ein $T_C \approx -200\text{K}$ auf, während die Filme mit einer erhöhten Gitterverspannung die weitaus tieferen Curie-Temperaturen $-750\text{K} < T_C < -600\text{K}$ aufweisen. Diese Beobachtungen unterstützen die Theorie des Domänenpinning in den SrTiO_3 -Schichten.

4.1.3 Dielektrische Verluste

Die Bestimmung der Verluste in den SrTiO_3 -Filmen basiert auf Messungen der Gesamtverluste $\tan\delta_{\text{PC}}$ sowie der Gesamtkapazität C_{PC} an der Standardkapazität mit SrTiO_3 und der Referenzprobe identischer Geometrie ohne SrTiO_3 . Die Werte für C_{ref} entsprechen den Werten in Abb. 37, die temperaturabhängigen Messungen für $\tan\delta_{\text{ref}}$ sind für verschiedene Spaltbreiten s in Abb. 43 dargestellt.

Abb. 44 zeigt ein Beispiel einer temperaturabhängigen Messung der gesamten Verluste $\tan\delta_{PC}$ einer planaren SrTiO_3 -Standardkapazität. Die in (Gl. 54) abgeleitete Beziehung zwischen gemessenen Gesamtverlusten und SrTiO_3 -Verlusten muss zunächst um den messbedingten Verlustbeitrag der Streukapazitäten erweitert werden und lässt sich damit folgendermaßen beschreiben:

$$(Gl. 64) \quad \tan\delta_{STO} = \frac{C_{PC} \cdot \tan\delta_{PC} - C_{ref} \cdot \tan\delta_{ref}}{C_{PC} - C_{ref}}.$$

Damit lassen sich aus den experimentell bestimmten Werten von C_{PC} , $\tan\delta_{PC}$, C_{ref} sowie $\tan\delta_{ref}$ die Verluste der SrTiO_3 -Schicht berechnen.

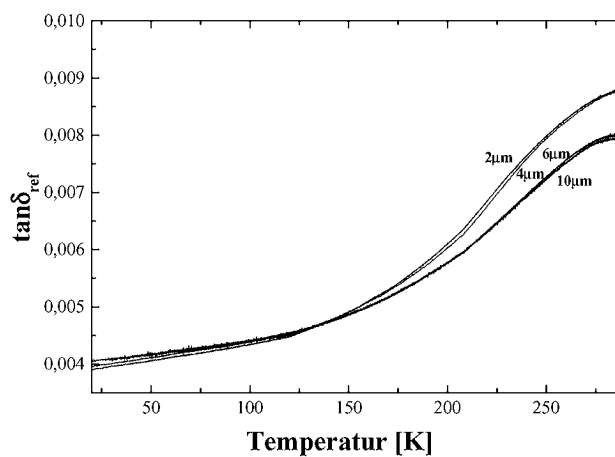


Abb. 43 Temperaturabhängige Messungen des Verlustes in planaren Referenzkapazitäten (ohne SrTiO_3) mit Spaltbreiten von $s = 2\mu\text{m} - 10\mu\text{m}$. Die Verlustverläufe $\tan\delta_{ref}$ wurden mittels Polynomen fünften Grades angenähert, um sie temperaturabhängig beschreiben zu können.

In Abb. 44 ist als Beispiel der mit (Gl. 64) kalkulierte Verlust $\tan\delta_{STO}$ der Probe #11 als Funktion der Temperatur gezeigt. Es zeigt sich, dass die gemessenen Gesamtverluste oberhalb von $T > 150\text{K}$ durch die Verluste in der Referenzkapazität $\tan\delta_{ref}$ dominiert werden, so dass der Fehler des berechneten SrTiO_3 -Verlustes bei größeren Temperaturen stark ansteigt. Es ist wahrscheinlich, dass dies zu dem systematisch zu hohen Temperaturen auftretenden kleinen Nebenpeak führt. Es ist zu vermuten, dass hier ein flacher Verlauf der Kurve die Temperaturabhängigkeit von $\tan\delta_{STO}$ besser beschreibt (siehe gestrichelte Linie in Abb. 44). Wie im Falle der Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} in Abb. 38 zeigt sich wiederum der für SrTiO_3 -Filme charakteristische Verlauf mit einem Anstieg bis zu einem Maximum im Temperaturbereich von $40\text{K} - 70\text{K}$ (hier $T(\tan\delta_{max}) \approx 48\text{K}$). Es ist charakteristisch für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten SrTiO_3 -Filme, dass die Probertemperatur für das Maximum im Verlust $\tan\delta_{STO}$ etwas unterhalb der Maximums der Dielektrizitätskonstanten ϵ_{STO} liegt. Dieser Effekt wird in Kapitel 4.2 näher untersucht.

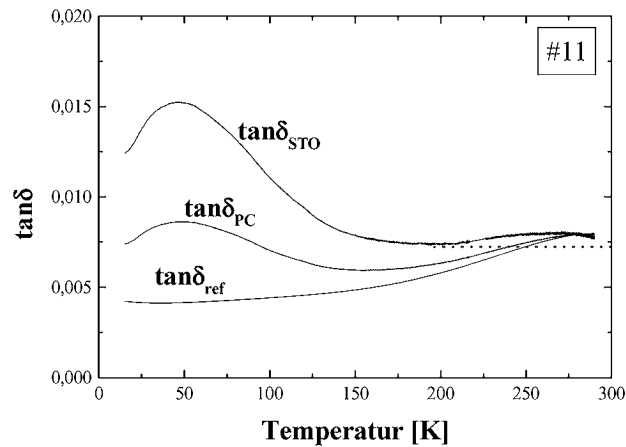


Abb. 44 Temperaturabhängigkeit des mit (Gl. 64) bestimmten Verlustes $\tan\delta_{\text{STO}}$ der SrTiO_3 -Schicht #11. Weiterhin enthält der Graph die Kurven des Gesamtverlusts $\tan\delta_{\text{PC}}$ und der Referenzkapazität $\tan\delta_{\text{ref}}$. Die Spaltbreite der planaren Kapazitäten betrug jeweils $s = 2\mu\text{m}$. Die gepunktete Linie deutet den wahrscheinlichen Temperaturverlauf der SrTiO_3 -Verluste im Temperaturbereich $T > 200\text{K}$ an, wo die Messgenauigkeit und Form der Referenzmessung wahrscheinlich hier systematisch zu einem kleinen Maximum in den Messdaten führt.

In Abb. 45 sind die analog bestimmten Verluste der SrTiO_3 -Schicht #9 für verschiedene Spaltbreiten s der planaren Kapazitätsgeometrie als Funktion der Proben temperatur aufgetragen.

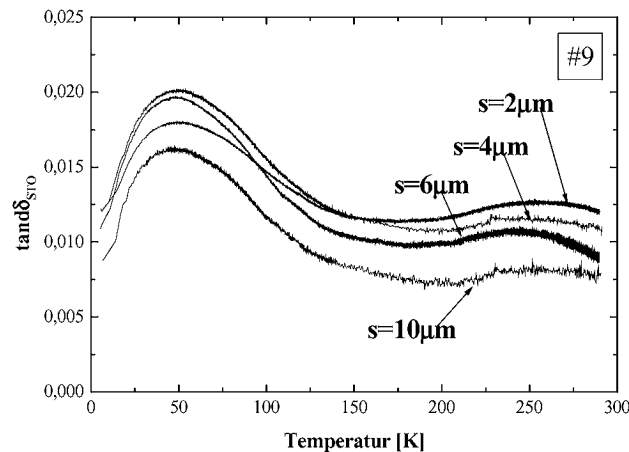


Abb. 45 Verlust des SrTiO_3 -Films #9 als Funktion der Proben temperatur für verschiedene Spaltbreiten s der planaren Standardkapazitätsgeometrie.

Da die berechnete Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} nicht in die Berechnungen (Gl. 64) einfließt, sondern direkt mit dem gemessenen Kapazitätsbeitrag C_{STO} gerechnet wird, sollte sich keine Abhängigkeit der Verluste im SrTiO_3 von der Spaltbreite ergeben. Die Werte für $\tan\delta_{\text{STO}}$

liegen in der Tat im Rahmen der Messgenauigkeit relativ dicht beieinander, was die Bestimmung von $\tan\delta_{\text{STO}}$ durch die Anwendung von (Gl. 64) bestätigt.

4.1.4 Abstimmbarkeit

Die Berechnung der elektrischen Abstimmbarkeit n_{STO} der Dielektrizitätskonstanten resultieren aus mit Hilfe von (Gl. 61) und (Gl. 62) in Kapitel 4.1.2 durchgeführten Berechnungen. Danach ergibt sich aus der Gesamtkapazität C_{PC} der planaren Kapazitätsgeometrie sowie der auf der Basis CeO_2 -gepufferten Saphirsubstrate hergestellten Referenzkapazitäten C_{ref} bei einer angelegten Gleichspannung U_{dc} folgender Zusammenhang:

$$(Gl. 65) \quad n_{\text{STO}}(U_{\text{dc}}) = \frac{\varepsilon_{\text{STO}}(0V)}{\varepsilon_{\text{STO}}(U_{\text{dc}})} = \frac{C_{\text{STO}}(0V)}{C_{\text{STO}}(U_{\text{dc}})} = \frac{C_{\text{PC}}(0V) - C_{\text{ref}}}{C_{\text{PC}}(U_{\text{dc}}) - C_{\text{ref}}}.$$

Dabei wird angenommen, dass die Werte der Referenzkapazität C_{ref} sowie $\tan\delta_{\text{ref}}$ nicht durch die angelegte Gleichspannung U_{dc} beeinflusst werden.

Zur Überprüfung dieser Annahmen wurden Abstimmbarkeitsmessungen an planaren Referenzkapazitäten auf CeO_2 -gepufferten Saphirsubstraten durchgeführt. Wie an einem Beispiel in Abb. 46 zu sehen ist, zeigen die Referenzkapazitäten im Rahmen der Messgenauigkeit keine Abstimmbarkeitseffekte, so dass die Abschätzungen $C_{\text{ref}}(U_{\text{dc}}) = \text{const}$ und $\tan\delta_{\text{ref}}(U_{\text{dc}}) = \text{const}$. gerechtfertigt sind.

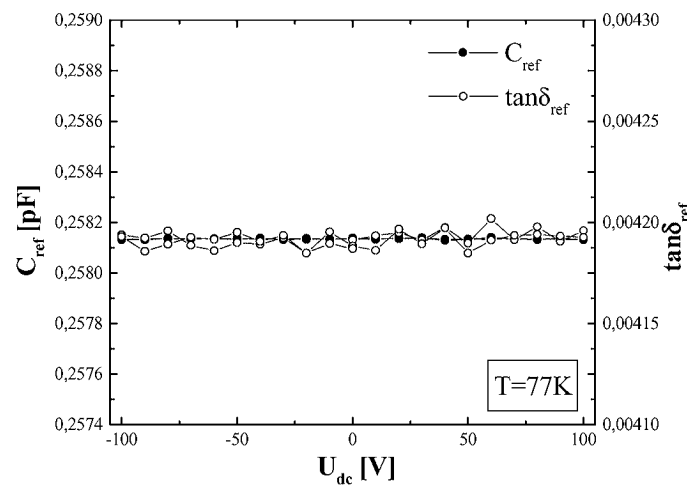


Abb. 46 Abstimmbarkeit der Kapazität sowie des Verlusts einer Referenzkapazität mit einer Spaltbreite von $s = 2\mu\text{m}$ als Funktion der angelegten Gleichspannung U_{dc} . Die Probertemperatur beträgt $T = 77K$.

In Abb. 47 ist die elektrische Abstimmbarkeit der Kapazität C_{STO} sowie des Verlustes $\tan\delta_{\text{STO}}$ einer planaren SrTiO_3 -Kapazität aufgetragen. Beide Größen zeigen eine ähnliche Spannungsabhängigkeit. Die Maximalwerte werden jeweils bei einer angelegten Gleichspannung von $U_{\text{dc}} = 0V$ erreicht und nehmen bei angelegter Gleichspannung ab. Wie zu erwarten, sind beide Kurven symmetrisch und nicht hysteretisch:

$$(Gl. 66) \quad C_{STO}(U_{dc}) = C_{STO}(-U_{dc}) \quad \text{sowie}$$

$$(Gl. 67) \quad \tan \delta_{STO}(U_{dc}) = \tan \delta_{STO}(-U_{dc}).$$

Diese Zusammenhänge werden in Kapitel 4.2 bei der Untersuchung der nichtlinearen Hochfrequenzeigenschaften verwendet werden.

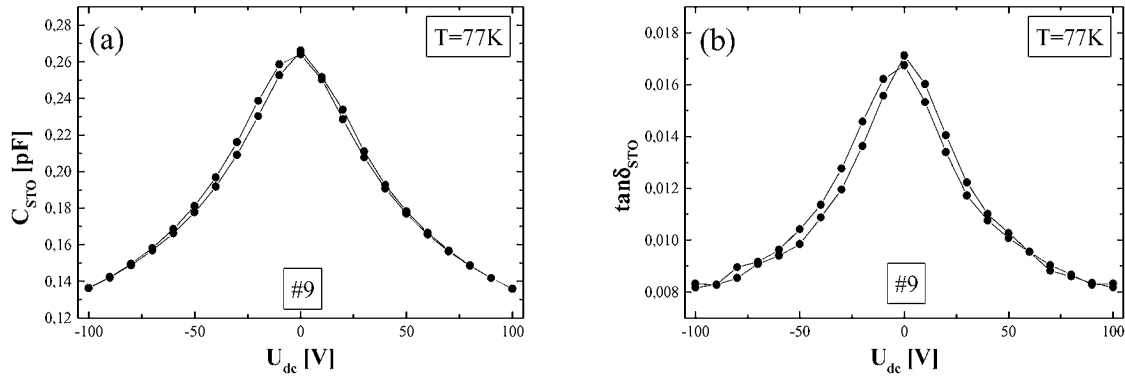


Abb. 47 (a) Kapazitiver Anteil C_{STO} sowie (b) Verlustbeitrag $\tan \delta_{STO}$ des $SrTiO_3$ der planaren $SrTiO_3$ -Kapazität #9 als Funktion der angelegten dc-Biasspannung U_{dc} . Die Spaltbreite der Kapazität beträgt $s = 2\mu m$, die Probertemperatur $T = 77K$.

Aus dem Kapazitätsbeitrag C_{STO} wird die Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} gemäß (Gl. 62) in Kapitel 4.1.2 berechnet. Die sich ergebende Spannungsabhängigkeit von ϵ_{STO} ist in Abb. 48 (a) dargestellt. Aufgrund der linearen Abhängigkeit $\epsilon_{STO} \propto C_{STO}$ gleicht der Verlauf jener der Teilkapazität C_{STO} in Abb. 47 (a).

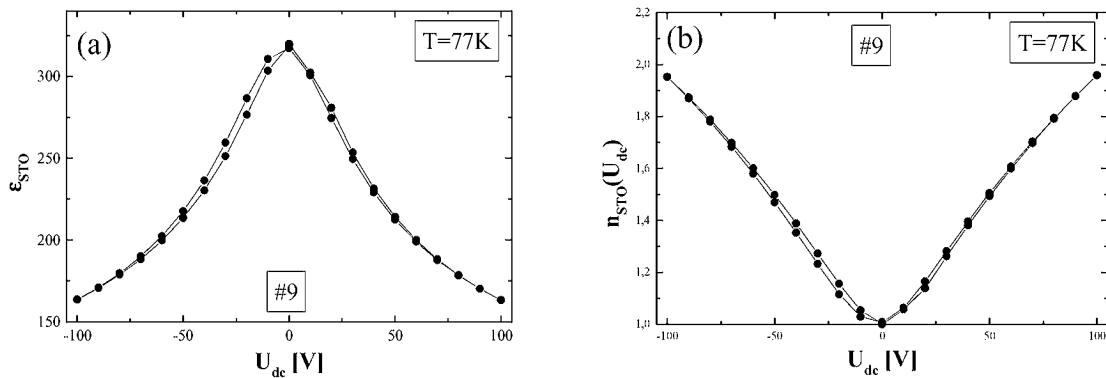


Abb. 48 (a) Spannungsabhängigkeit (a) der kalkulierten Dielektrizitätskonstanten ϵ_{STO} sowie (b) der Abstimmbarkeit n_{STO} der planaren $SrTiO_3$ -Kapazität #9. Die Spaltbreite beträgt $s = 2\mu m$, die Probertemperatur $T = 77K$.

Aus der Spannungsabhängigkeit der Dielektrizitätskonstanten ϵ_{STO} lässt sich dann mittels (Gl. 65) die Abstimmbarkeit n_{STO} berechnen. Abb. 48 (b) zeigt als Beispiel die resultierende

Abstimmbarkeit n_{STO} der planaren SrTiO_3 -Kapazität als Funktion der angelegten Gleichspannung U_{dc} .

Abb. 49 zeigt nun einen Vergleich der Abstimmbarkeit n_{STO} von sechs Standardkapazitäten auf der Basis der unterschiedlichen SrTiO_3 -Schichten bei $T = 77\text{K}$. Die Spaltbreite der planaren Kapazitäten beträgt dabei jeweils $s = 2\mu\text{m}$. Aufgrund ihres Verhaltens lassen sich die Proben in zwei unterschiedliche Klassen unterteilen:

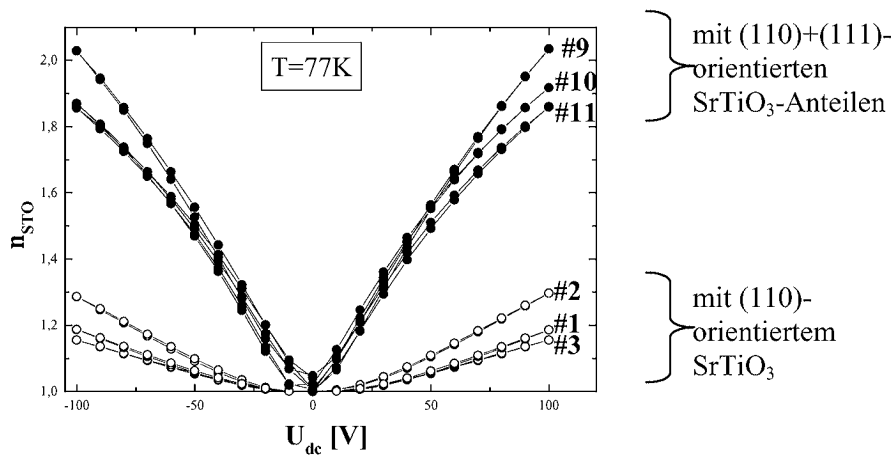


Abb. 49 Abstimmbarkeit n_{STO} von sechs SrTiO_3 -Filmen als Funktion der angelegten Gleichspannung U_{dc} . Die Spaltbreite der planaren Kapazität beträgt in allen Fällen $s = 2\mu\text{m}$, die Probertemperatur $T = 77\text{K}$. Die drei Proben mit geschlossenen Kreissymbolen sind SrTiO_3 -Filme mit kleiner Gitterverspannung und zusätzlicher (111)- SrTiO_3 -Orientierung, die bei hohen Heizertemperaturen abgeschieden wurden.

Die SrTiO_3 -Schichten #9 - #11 haben stark spannungsabhängige dielektrische Eigenschaften. Ihre Abstimmbarkeit liegt zum Beispiel bei einer angelegten Gleichspannung von $U_{\text{dc}} = 100\text{V}$ in einem Bereich von $1.85 < n_{\text{STO}}(U_{\text{dc}}=100\text{V}) < 2.05$. Dies sind Vertreter der Schichten mit (111)- SrTiO_3 -Phasenanteilen, die bei hohen Heizertemperaturen aufgewachsen wurden.

Die anderen drei SrTiO_3 -Schichten #1 - #3 wurden bei niedrigeren Temperaturen abgeschieden. Sie besitzen keine (111)- SrTiO_3 -Phasenanteile und sind stark verspannt. Die Spannungsabhängigkeit von ϵ_{STO} dieser Schichten ist deutlich geringer. Ihre Abstimmbarkeit liegt bei einer angelegten Gleichspannung von $U_{\text{dc}} = 100\text{V}$ lediglich in einem Bereich von $1.15 < n_{\text{STO}}(U_{\text{dc}}=100\text{V}) < 1.3$. Die stark unterschiedliche Spannungsabhängigkeit der dielektrischen Eigenschaften der bei unterschiedlichen Bedingungen präparierten SrTiO_3 -Schichten werden in Kapitel 4.1.5 im Zusammenhang diskutiert.

Für die weitere Verwendung und Vergleichbarkeit der Daten ist es nun wichtig, die Abstimmbarkeit als Funktion des angelegten elektrischen Feldes anzugeben. In erster Näherung ergibt sich für das im Spalt wirksame elektrische Feld:

$$(Gl. 68) \quad E_{\text{dc}} = \frac{U_{\text{dc}}}{s}.$$

In Abb. 50 (a) ist die Abstimmbarkeit n_{STO} der SrTiO_3 -Probe #9 als Funktion des elektrischen Feldes E_{dc} für verschiedenen Spaltbreiten s der planaren Kapazitätsstruktur aufgetragen. Die Abstimmbarkeiten für die verschiedenen Kapazitätsspalte sind nahezu identisch, jedoch liegen die Werte für die kleinste Spaltbreite deutlich unter denen der größeren Spalte. Dieser Effekt kann auf die Näherung in (Gl. 68) zurückgeführt werden, in der die Tatsache, dass die Kapazität auf der SrTiO_3 -Schicht aufgebaut ist, nicht berücksichtigt wird. In erster Näherung kann dieser Effekt durch eine zusätzliche Verbreiterung des Spalts Δs korrigiert werden, so dass das eigentliche Feld im Spalt:

$$(Gl. 69) \quad E'_{\text{dc}} = \frac{U_{\text{dc}}}{s + \Delta s}$$

beträgt. Eine Korrektur der Daten mit $\Delta s = 0.8\mu\text{m}$ (siehe Abb. 50 (b)) führt zu einer verbesserten Übereinstimmung der Daten.

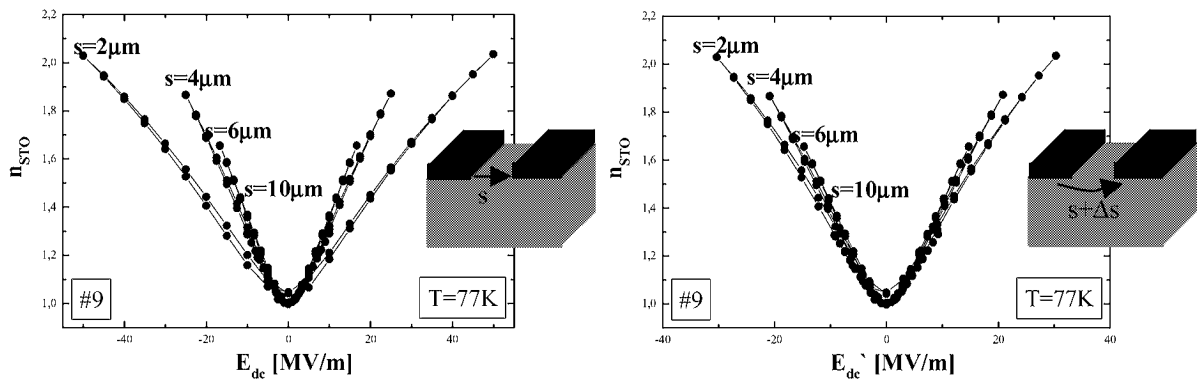


Abb. 50 Abstimmbarkeit n_{STO} der Probe #9 als Funktion (a) des elektrischen Feldes E_{dc} und (b) des effektiven elektrischen Feldes E'_{dc} (mit $\Delta s = 0.8\mu\text{m}$) für unterschiedliche nominelle Spaltbreiten s . Die Probentemperatur beträgt jeweils $T = 77\text{K}$. Die Skizzen verdeutlichen den Unterschied zwischen nomineller Spaltbreite s und effektiver Spaltbreite $s + \Delta s$ im Falle planarer Kapazitäten.

4.1.5 Diskussion

In Kapitel 4.1.1 wurden die kristallinen Eigenschaften, in Kapitel 4.1.2 - 4.1.4 die dielektrischen Eigenschaften der charakterisierten Schichten, Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} , Verluste $\tan\delta_{\text{STO}}$ sowie Abstimmbarkeit n_{STO} präsentiert. Im Folgenden werden die Ergebnisse miteinander verglichen und im Zusammenhang diskutiert. Eine mögliche Interpretation der unterschiedlichen Verhaltensweisen der Schichten in Form eines Phasendiagramms wird in Kapitel 4.1.5.1 gegeben.

4.1.5.1 Korrelation der strukturellen und dielektrischen Schichteigenschaften

Nach der Diskussion der kristallinen Eigenschaften sowie der Diskussion der dielektrischen Eigenschaften sollen nun die möglichen Zusammenhänge zwischen diesen Materialparametern der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten SrTiO_3 -Schichten untersucht werden.

Abb. 51 (a) – (c) zeigt zunächst die Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} der sechs SrTiO₃-Schichten als Funktion der relativen Gitterverspannung des SrTiO₃-Kristallgitters $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$ für unterschiedliche Probestemperaturen $T = 60\text{K}$, $T = 77\text{K}$ sowie $T = 100\text{K}$.

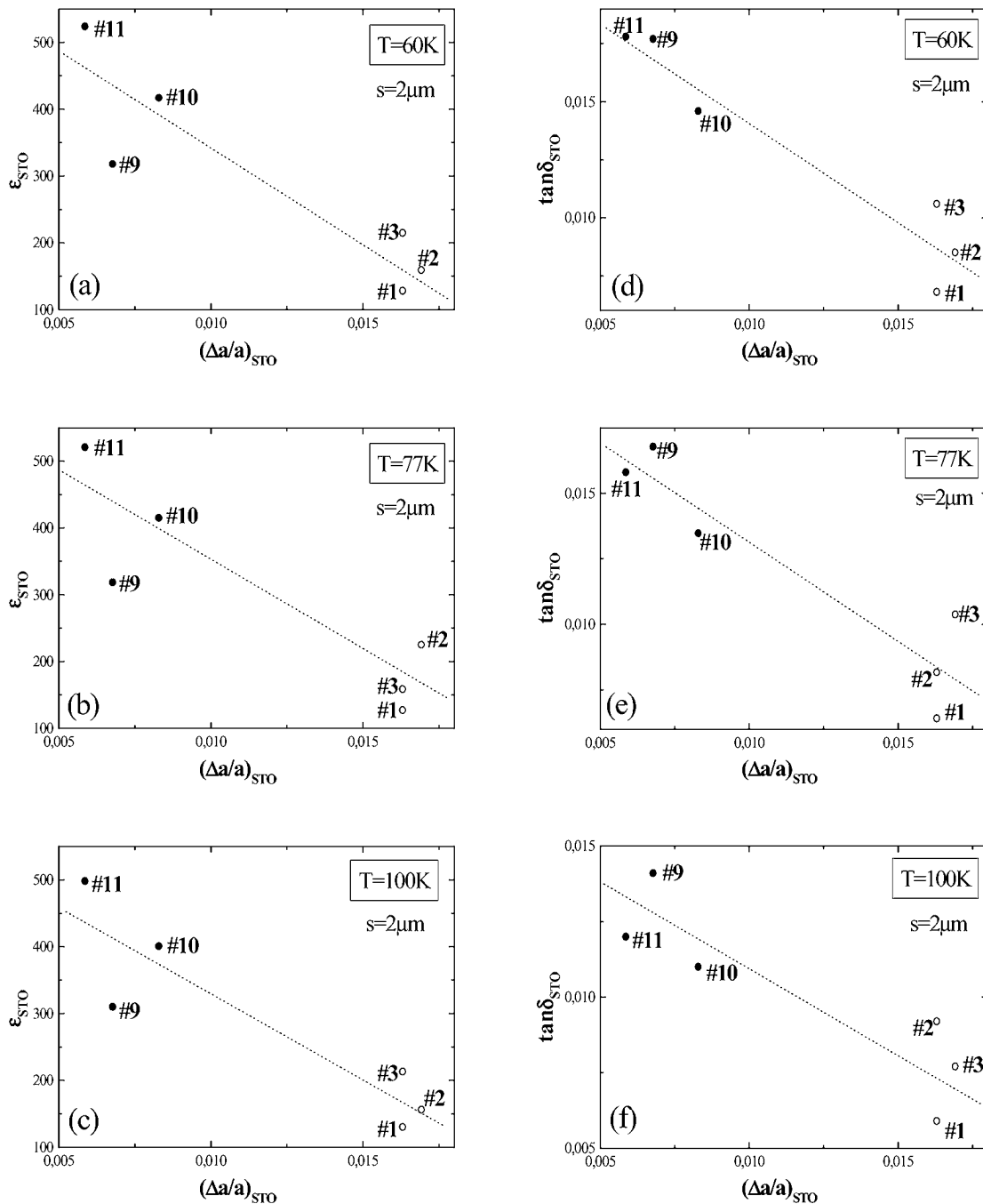


Abb. 51 Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} und $\tan \delta_{\text{STO}}$ von sechs SrTiO₃-Schichten als Funktion der Gitterverspannung, charakterisiert durch die relative Verspannung der Gitterkonstanten $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$, bei den Temperaturen $T = 77\text{K}$, $T = 60\text{K}$ sowie $T = 100\text{K}$. Die offenen Symbole symbolisieren Proben ohne (111)-SrTiO₃-Phasenanteile, während die geschlossenen Symbole die Proben mit (111)-Phasenanteilen repräsentieren.

Es fällt auf, dass SrTiO₃-Schichten mit einer geringeren Gitterspannung (charakterisiert durch ein kleines $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$) eine deutlich höhere Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} aufweisen als Proben mit großer Gitterverspannung.

In Abb. 51 (d) – (f) sind analog die $\tan\delta_{\text{STO}}$ -Werte der SrTiO₃-Schichten als Funktion der relativen Gitterverspannung $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$ für die entsprechenden Proben Temperaturen wiedergegeben. Auch hier zeigt sich, dass SrTiO₃-Schichten mit einer geringeren Gitterverspannung (d. h. mit (111)-Phasenanteilen) einen deutlich höheren Verlust $\tan\delta_{\text{STO}}$ aufweisen. Die dielektrischen Eigenschaften scheinen also in gleicher Weise mit der Gitterverspannung korreliert zu sein. Dies wird in Abb. 53 sichtbar.

In Abb. 52 schließlich ist die Abhängigkeit der Abstimmbarkeit der Dielektrizitätskonstanten n_{STO} von der relativen Verspannung des SrTiO₃-Kristallgitters $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$ für eine dc-Biasspannung von $U_{\text{dc}} = 100\text{V}$ bei einer Temperatur von $T = 77\text{K}$ dargestellt. Wie bei der Auftragung der Dielektrizitätskonstanten ϵ_{STO} und den Verlusten $\tan\delta_{\text{STO}}$ (Abb. 51) ist auch hier zu erkennen, dass auch die Abstimmbarkeit n_{STO} für die kleinsten Gitterverspannungen $(\Delta a/a)$ die größten Werte erreicht. All diese Vergleiche (Abb. 51 und Abb. 52) legen (i) zum einen nahe, die direkte Korrelation der dielektrischen Eigenschaften ϵ_{STO} , $\tan\delta_{\text{STO}}$ und n_{STO} zu untersuchen, (ii) zum anderen weisen sie darauf hin, dass die Gitterverspannung eine entscheidende Rolle für alle dielektrischen Eigenschaften spielt.

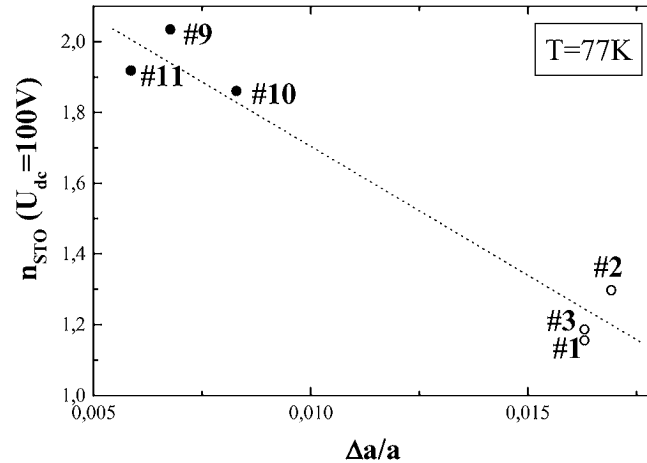


Abb. 52 Abstimmbarkeit n_{STO} von sechs SrTiO₃-Schichten als Funktion der Gitterverspannung, charakterisiert durch die relative Verspannung der Gitterkonstanten $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$. Die Proben temperatur betrug in allen Fällen $T = 77\text{K}$. Die offenen Symbole symbolisieren wiederum Proben ohne (111)-SrTiO₃-Phasenanteile, die bei niedrigeren Heizertemperaturen abgeschieden wurden, während die geschlossenen Symbole die Proben mit (111)-SrTiO₃-Phasenanteilen repräsentieren.

Direkte Korrelation: Die Korrelation der unterschiedlichen dielektrischen Eigenschaften ist in Abb. 53 wiedergegeben. Sowohl ϵ_{STO} als auch n_{STO} nehmen mit zunehmenden Verlusten $\tan\delta_{\text{STO}}$ zu. In beiden Fällen lassen sich die Werte der drei SrTiO₃-Filme mit einer geringen

Gitterverspannung ($0.6\% < (\Delta a/a)_{\text{STO}} < 0.8\%$) genauso linear annähern wie die drei SrTiO₃-Filme mit einer großen Verspannung ($1.6\% < (\Delta a/a)_{\text{STO}} < 1.8\%$) des SrTiO₃-Gitters. Zwischen beiden linearen Fits befindet sich jeweils ein deutlicher Sprung in der Abhängigkeit $\epsilon_{\text{STO}}(\tan\delta_{\text{STO}})$ bzw. $n_{\text{STO}}(\tan\delta_{\text{STO}})$, und zwar genau zwischen den Proben, zwischen denen ein Sprung in der Gitterverspannung $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$ stattfindet.

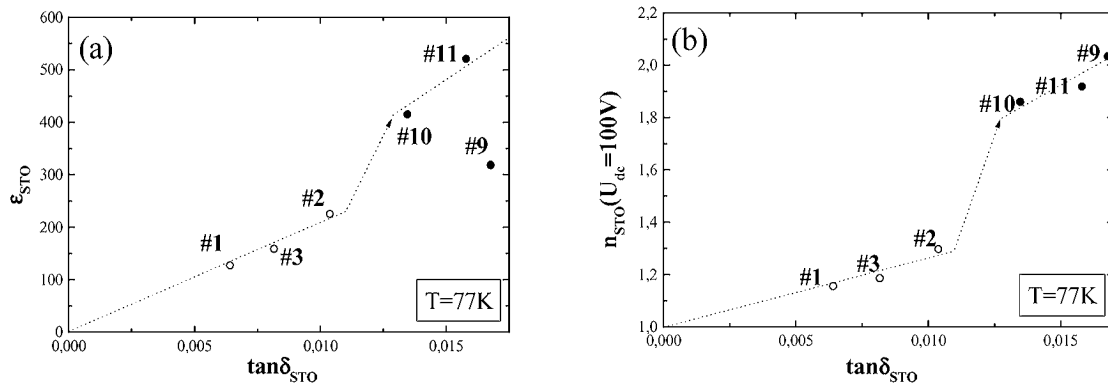


Abb. 53 (a) Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} sowie (b) Abstimmbarkeit n_{STO} bei einer angelegten Gleichspannung von $U_{\text{dc}} = 100\text{V}$ als Funktion des Verlustes $\tan\delta_{\text{STO}}$. Die Proben-temperatur betrug bei allen Messungen $T = 77\text{K}$. Die offenen Symbole symbolisieren wiederum Proben ohne (111)-SrTiO₃-Phasenanteil, die bei niedrigeren Heizertemperaturen abgeschieden wurden, während die geschlossenen Symbole die Proben mit (111)-SrTiO₃-Phasenanteil repräsentieren.

Phasendiagramm: Thermodynamisch erfassen lässt sich der Einfluss der Gitterverspannung auf die dielektrischen Eigenschaften der SrTiO₃-Filme gegebenenfalls durch eine Erweiterung der Formel für die freie Energie F des Ferroelektrikums (Gl. 18) um einen Term F_S , der die elastische Verspannung des Gitters beschreibt. Die transformierte freie Energie des ferroelektrischen Films mit Gitterverspannung ergibt sich in der Nähe des Phasenübergangs zu [Pert98]:

$$(Gl. 70) \quad F' = F + F_S = F + u_1\sigma_1 + u_2\sigma_2 + u_6\sigma_6.$$

Dabei sind u_1 , u_2 und u_6 die Gitterfehlanspannungen der verschiedenen Richtungen an der Grenzfläche zwischen Substrat und Film, σ_1 , σ_2 und σ_6 die Parameter der im Film erzeugten Verspannung. Im einfachsten Falle einer kubischen Gitterstruktur eines Films auf einer kubischen Unterlage (Substrat bzw. Pufferschicht) ergibt sich $u_6 = 0$ (in Richtung der c-Achse) und $u_1 = u_2$ (in a-Achsen- bzw. b-Achsen-Richtung) und damit:

$$(Gl. 71) \quad u_i = \frac{a_{\text{Film}} - a_{\text{Unterlage}}}{a_{\text{Film}}} \quad \text{für } i=1,2$$

mit den Gitterkonstanten a_{Film} des Films und der Gitterkonstanten $a_{\text{Unterlage}}$ der Unterlage, d. h. Substrat bzw. Pufferschicht. Es wird in diesem Modell in erster Näherung also zunächst davon ausgegangen, dass lediglich die Gitterfehlانpassung zwischen Substrat bzw. Pufferschicht und deponiertem ferroelektrischen Film die erzeugten Gitterverspannungen des Films vorgibt.

An dieser Stelle soll noch einmal auf die Verwendung der CeO_2 -Pufferschicht zwischen Saphirsubstrat und SrTiO_3 -Film eingegangen werden. Während die Gitterfehlانpassung zwischen SrTiO_3 ($a_{(100)} = 3.905 \text{ \AA}$, $a_{(110)} = 5.522 \text{ \AA}$) und r-cut- Al_2O_3 ($a_{\text{Saphir}} = 4.76 \text{ \AA}$) im Falle von (110)- SrTiO_3 $u_{\text{STO-Saphir}} = 13.8\%$ beträgt, liegt die Gitterfehlانpassung zwischen (110)- SrTiO_3 und CeO_2 ($a = 5.41 \text{ \AA}$) bei lediglich $u_{\text{STO-CeO}} = 2\%$. Die Gitterfehlانpassung zwischen CeO_2 und Saphir beträgt damit zwar $u_{\text{CeO-Saphir}} = 11.8\%$, allerdings kann die Gitterverspannung im Falle der CeO_2 -Pufferschicht durch Defekte und Verkippen weitestgehend aufgefangen werden [Vaup98]. Dies wird unter anderem durch die Verbreiterung der Rockingkurven der (200)- CeO_2 -Orientierung ($\Delta\omega > 1^\circ$) bestätigt. Diese vorteilhafte Eigenschaft des CeO_2 war einer der Gründe für die Verwendung dieses Puffermaterials, CeO_2 eignet sich ideal als Pufferschicht für das Wachstum wenig verspannter SrTiO_3 -Schichten auf Saphir.

Weiterhin wird an dieser Stelle deutlich, warum die (110)- SrTiO_3 -Orientierung die bevorzugte Wachstumsorientierung des SrTiO_3 auf CeO_2 ist. Aufgrund ihrer geringen Gitterfehlانpassung $u_{(110)\text{STO-CeO}} = 2\%$ gegenüber $u_{(100)\text{STO-CeO}} = 38,5\%$ ist (110)- aber kein (100)- SrTiO_3 auf $\text{CeO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ zu finden.

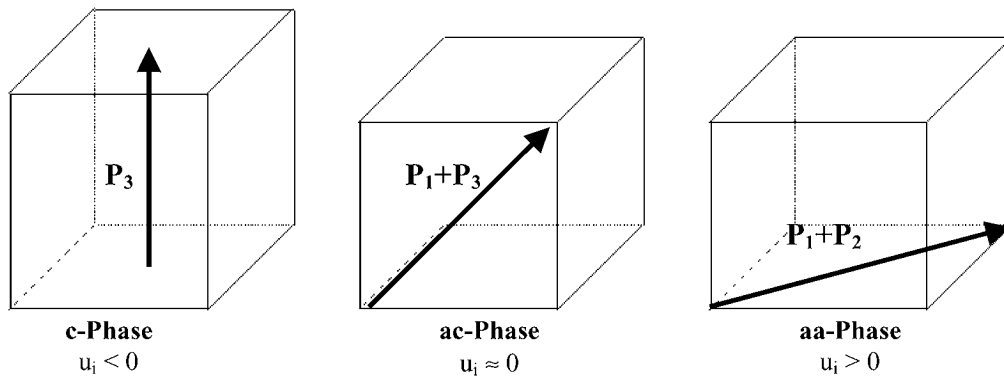


Abb. 54 Skizze der verschiedenen Gitterverspannungen u_i und der resultierenden Polarisationen in der Nähe des Phasenübergangs.

In der Referenz [Pert98] wird nahegelegt, dass die Erweiterung der freien Energie des ferroelektrischen Films in der Nähe des Phasenübergangs drei verschiedene, von der Verspannung des Films abhängige paraelektrische Phasen mit unterschiedlichen Polarisationsrichtungen zulässt (Abb. 54). Dabei ist P_1 die Polarisation in Richtung der a-Achse, P_2 die Polarisation in Richtung der b-Achse sowie P_3 die Polarisation in Richtung der c-Achse. Die drei möglichen Phasen sind dann die sogenannte c-Phase ($P_1 = P_2 = 0$, $P_3 \neq 0$), die ac-Phase ($P_1 \neq 0$, $P_2 = 0$, $P_3 \neq 0$) und die aa-Phase ($P_1 = P_2 \neq 0$, $P_3 = 0$). Abb. 55 (a) zeigt

eine schematische Darstellung der drei möglichen Phasen sowie der sich ergebenden Dielektrizitätskonstanten ϵ in Abhängigkeit der relativen Gitterverspannung u_m für den Fall kubischer Gitter auf kubischer Unterlage.

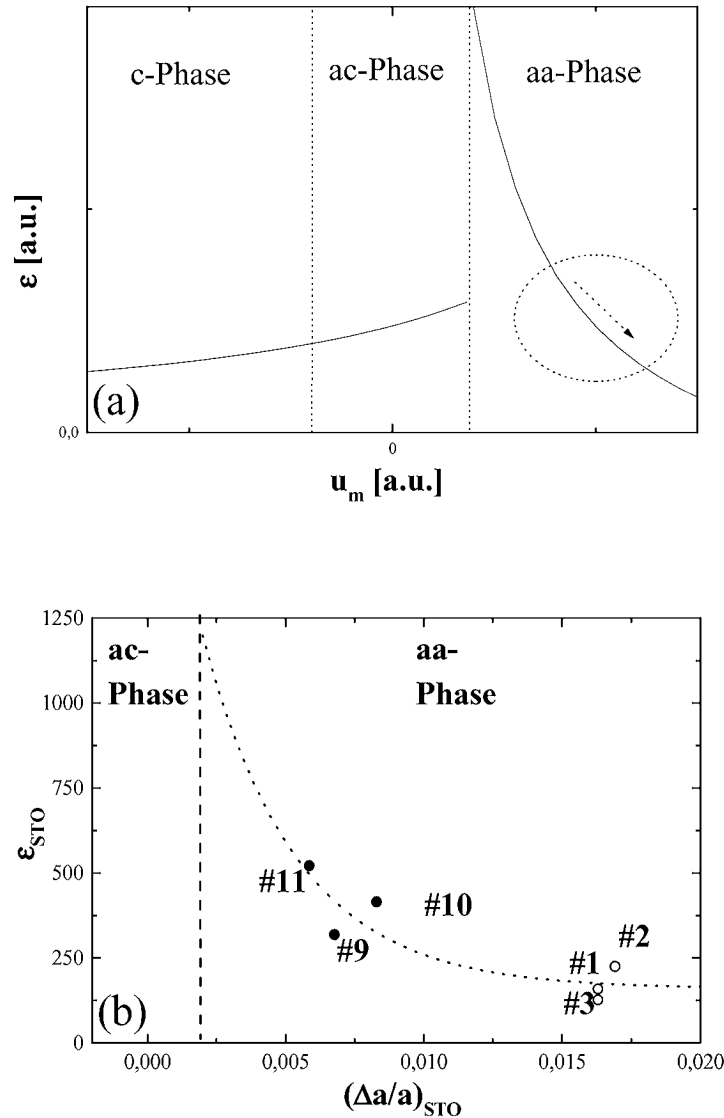


Abb. 55 (a) Schematische Darstellung der erwarteten Abhängigkeit der Dielektrizitätskonstante ϵ eines kubischen ferroelektrischen Films von der Gitterverspannung u_m in der Nähe des Phasenübergangs [Pert98]. Markiert ist der Bereich der im Rahmen dieser Arbeit charakterisierten $SrTiO_3$ -Filme mit der Tendenz der Dielektrizitätskonstanten in diesem Bereich. (b) Schematische Darstellung der im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Filme mit skizzierter Abhängigkeit ϵ_{STO} als Funktion der Gitterverspannung $(\Delta a/a)$.

Aus den vorangegangenen Messungen der dielektrischen Eigenschaften der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten $SrTiO_3$ -Filme, insbesondere der Dielektrizitätskonstanten ϵ_{STO} sowie ihrer fallenden Tendenz bei steigender relativer Gitterverspannung $(\Delta a/a)$, ergibt sich, dass sich diese Filme in der Nähe eines Phasenübergangs und nicht mehr in der rein

paraelektrischen Phase befinden. Diese Vermutung wird durch die Darstellung der Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} als Funktion der Gitterverspannung $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$ bestätigt (Abb. 55 (b)). Skizziert ist hier das vorausgesagte Verhalten von in der aa-Phase befindlichen ferroelektrischen Filmen zusammen mit den experimentell bestimmten Werten für unsere SrTiO_3 -Proben. Obwohl die (110)-Orientierung in den SrTiO_3 -Filmen vorherrscht, scheint dieses für kubisch auf kubisch aufwachsende Ferroelektrika entwickelte Modell das Verhalten der SrTiO_3 -Schichten relativ gut zu beschreiben.

Weiterhin wird durch diese Messungen nahegelegt, dass die im ferroelektrischen Film resultierende Gitterverspannung $(\Delta a/a)$ nicht nur die durch die Gitterfehlانpassung u_m zwischen Substrat bzw. Pufferschicht und Film gegeben ist, sondern durch geeignete Methoden wie die Variation der Depositionsparameter stark beeinflusst werden kann. Diese Annahme bietet eine ideale Beschreibung der dielektrischen Eigenschaften der untersuchten SrTiO_3 -Filme.

Generell zeigt sich, dass die Gitterfehlانpassung zwischen Substrat bzw. Pufferschicht und deponiertem ferroelektrischem Film sowie die relative Gitterverspannung $(\Delta a/a) \approx u_i$ entscheidende Parameter im Hinblick auf die resultierenden dielektrischen sowie abstimmbaren Eigenschaften der Schichten darstellen. Interessant für weiterführende Arbeiten wären daher zum Beispiel die Deposition solcher ferroelektrischen Schichten auf anderen Substraten bzw. Pufferschichten mit unterschiedlichen Gitterfehlانpassungen u_m zwischen Untergrund und Film sowie die gezielte nachträgliche Beeinflussung der Gitterverspannung der ferroelektrischen Schicht mittels Methoden wie der Temperung oder Ionendotierung. Eine gezielte Einstellung der dielektrischen Eigenschaften wie der Dielektrizitätskonstanten ϵ , des Verlusts $\tan \delta$ sowie der Abstimbarkeit der Dielektrizitätskonstanten n ferroelektrischer Dünnschichten mittels geeigneter Substratwahl und anschließender Optimierung der Präparationsbedingungen wird somit möglich.

Qualitätsfaktor: Zur Bewertung der Anwendungstauglichkeit der Schichten definieren wir den Qualitätsfaktor K (Gl. 29) so, dass er die Filmeigenschaften n_{STO} sowie $\tan \delta_{\text{STO}}$ charakterisiert:

$$(Gl. 72) \quad K_{\text{STO}}(U_{dc}) = \sqrt{\frac{(n_{\text{STO}}(U_{dc}) - 1)^2}{n_{\text{STO}}(U_{dc}) \cdot \tan \delta(0V) \cdot \tan \delta(U_{dc})}}.$$

In Abb. 56 ist der Filmqualitätsfaktor K_{STO} als Funktion der Gitterverspannung, charakterisiert durch die relative Verspannung des SrTiO_3 -Gitters $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$, aufgetragen. Die angelegte Gleichspannung beträgt bei allen Messungen $U_{dc} = 100\text{V}$. Es ist klar ersichtlich, dass sich für kleine Gitterverspannungen $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$ die größten Qualitätsfaktoren ergeben. Für die Anwendung sollte also eine möglichst geringe Gitterverspannung wünschenswert sein.

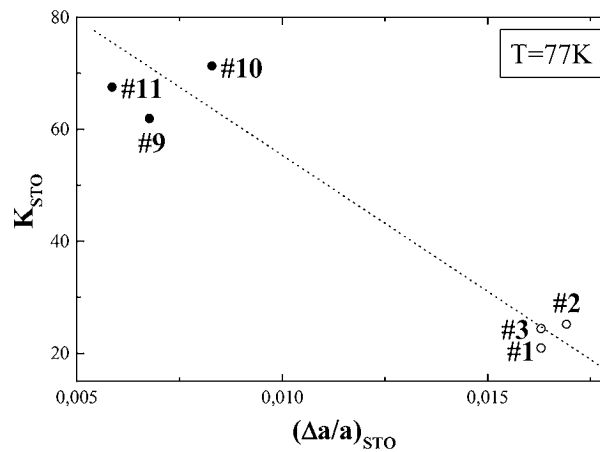


Abb. 56 Qualitätsfaktor $K_{STO}(U_{dc}=100V)$ einiger $SrTiO_3$ -Schichten als Funktion der Gitterverspannung des $SrTiO_3$ charakterisiert durch die relative Verspannung der Gitterkonstanten $(\Delta a/a)_{STO}$. Die Probertemperatur betrug in allen Fällen $T = 77K$. Die offenen Symbole symbolisieren Proben ohne (111)- $SrTiO_3$ -Phasenanteile, die bei einer geringeren Heizertemperatur abgeschieden wurden, während die geschlossenen Symbole die Proben mit (111)- $SrTiO_3$ -Phasenanteilen repräsentieren.

4.2 Nichtlineare Mikrowelleneigenschaften der $SrTiO_3$ -Schichten

In Kapitel 4.1 wurden bereits die kristallinen und grundlegenden dielektrischen Eigenschaften der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten $SrTiO_3$ -Filme dargestellt. Dabei wurden Zusammenhänge der verschiedenen Parameter, sowohl der strukturellen als auch der dielektrischen, nachgewiesen. In diesem Kapitel sollen nun die nichtlinearen Eigenschaften der Schichten untersucht und mögliche Verbindungen zu den zuvor genannten Materialeigenschaften der Filme aufgezeigt werden. Hierzu werden zum einen Intermodulationsmessungen präsentiert, zum anderen sollen auch die schon in Kapitel 4.1 vorgestellten Messungen unter dem Aspekt der nichtlinearen Eigenschaften beleuchtet werden.

4.2.1 Intermodulationsmessungen

Wie bereits in Kapitel 2.6.3 diskutiert, sind aufgrund nichtlinearer dielektrischer Eigenschaften der dünnen $SrTiO_3$ -Filme ebenfalls nichtlineare Effekte bei Mikrowellenmessungen an diesen Filmen zu erwarten. Der experimentelle Nachweis der nichtlinearen Mikrowelleneigenschaften der $SrTiO_3$ -Filme konzentriert sich im Rahmen dieser Arbeit auf die Messung von möglichen Intermodulationsstörungen (engl. Intermodulation Distortion, IMD) $P_{\pm i}$ ($i=3,5,7,\dots$) bei Frequenzen $f_{n,m} = n \cdot f_1 + m \cdot f_2$. Das wichtigste IMD-Signal ist das erste Signal $P_{\pm 3}$, IMD-Signal dritter Ordnung. Abb. 57 zeigt als Beispiel ein IMD-Spektrum mit zwei an eine Probe angelegten Fundamentalsignalen ($f_1 = 1.94GHz$, $f_2 = 1.96GHz$) sowie die beiden ersten IMD-Signale, $P_{\pm 3}$.

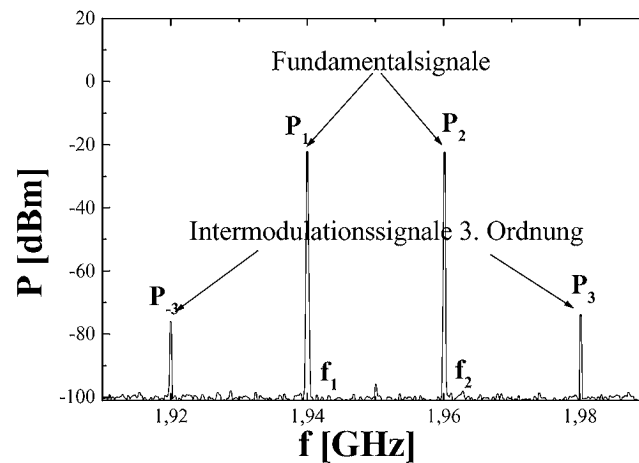


Abb. 57 Beispiel eines Intermodulationsspektrums mit zwei Fundamentalsignalen sowie zwei IMD-Signalen 3. Ordnung.

Zur Auswertung von IMD-Messungen kann als üblicher Ansatz sowohl die ausgehende Leistung der fundamentalen Signale $P_{1,out}$ als auch die im Bauelement generierte Leistung der Intermodulationssignale, hier $P_{3,out}$, als Funktion der in das Bauelement eingestrahlichten Leistung $P_{1,in}$ aufgetragen werden. Diese Form der Auftragung ist in Abb. 58 (a) gezeigt.

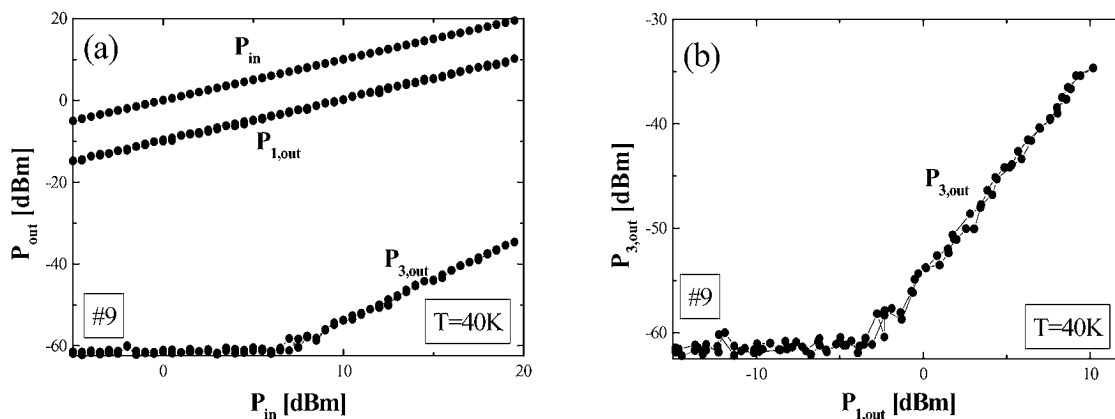


Abb. 58 Beispiele (a) der üblichen Darstellung von IMD-Messungen: Auftragung der Leistungen von Fundamentalsignalen $P_{1,out}$ und Intermodulationssignalen $P_{3,out}$ als Funktion der Eingangsleistung P_{in} sowie (b) für Intermodulationsmessungen an SrTiO_3 -Kapazitäten mit variabler Kopplung geeignete Auftragung, bei der das IMD-Signal als Funktion der Ausgangsleistung des Primärsignals aufgetragen wird.

Im Falle der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten SrTiO_3 -Kapazitäten ist aber die Kopplung der Kapazität aufgrund der veränderlichen Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} eine stark veränderliche Größe, so dass der Quotient ($P_{1,out} / P_{1,in}$) nicht notwendigerweise durch eine Konstante gegeben sein muss. Um diesen Umstand zu berücksichtigen und trotzdem vergleichende Auswertungen von Intermodulationsmessungen verschiedener Proben,

Temperaturen und Spannungen durchführen zu können, ist in den meisten Graphen dieser Arbeit die Intermodulationsleistung $P_{3,\text{out}}$ als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung $P_{1,\text{out}}$ gewählt. So ist sichergestellt, dass der in der SrTiO_3 -Kapazität effektiv wirkende Leistungsbeitrag der Fundamentalsignale für alle Messungen gut übereinstimmt. Im Folgenden wird daher mit P_1 die Ausgangsleistung $P_{1,\text{out}}$ bezeichnet. Dort wo die Eingangsleistung verwandt wird, wird explizit $P_{1,\text{in}}$ aufgeführt. Ein Beispiel für diese Art der Auftragung ist in Abb. 58 (b) dargestellt.

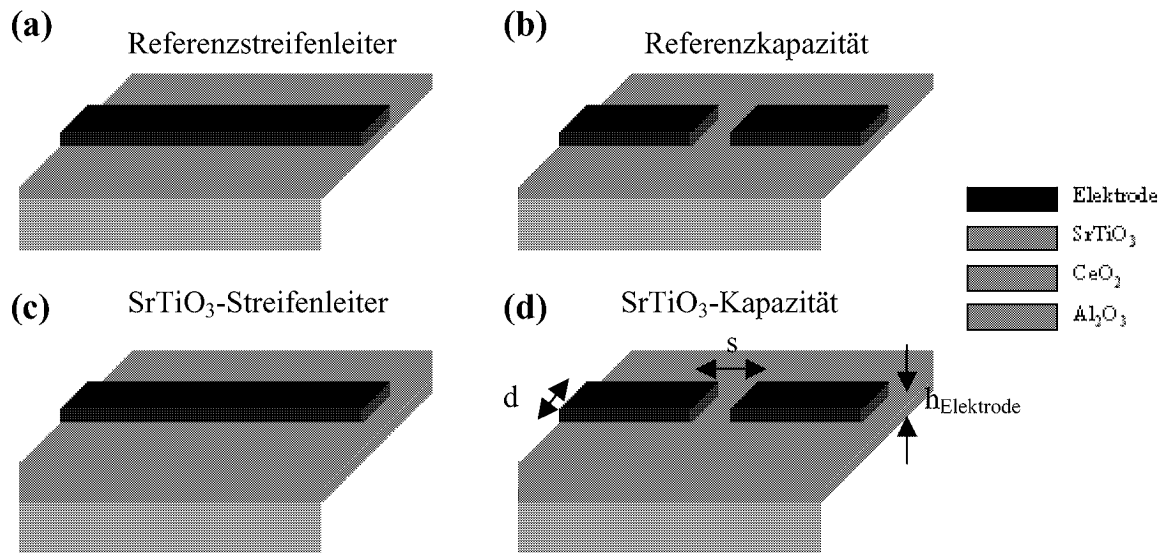


Abb. 59 IMD-Testgeometrien: (a) planarer Streifenleiter auf CeO_2 -gepuffertem Saphir, (b) Kapazitätsspalte auf CeO_2 -gepuffertem Saphir, (c) planarer Streifenleiter auf SrTiO_3 -Film und (d) Kapazitätsspalte auf SrTiO_3 -Film. Typische Parameter für Streifenleiter und Kapazitäten sind $d = 500\mu\text{m}$, $s = 2\mu\text{m}$ und $h_{\text{Elektrode}} = 300\text{nm}$.

Um die Quellen der IMD-Störungen zu identifizieren, wurden zunächst vergleichende IMD-Messungen an verschiedenen Testgeometrien durchgeführt. Dazu gehörten

- (a) planare Au-Streifenleiter auf CeO_2 -gepuffertem Saphir,
- (b) planare Au-Kapazitätsspalte auf CeO_2 -gepuffertem Saphir,
- (c) planare Au-Streifenleiter auf SrTiO_3 -Filmen auf CeO_2 /Saphir und
- (d) planare Au-Kapazitätsspalte auf SrTiO_3 -Filmen auf CeO_2 /Saphir.

Die einzelnen Testgeometrien sind in Abb. 59 schematisch dargestellt. Um die Vergleichbarkeit aller Messungen zu gewährleisten, wurden identische Parameter verwandt: Schichtdicken der Elektroden $h_{\text{Elektrode}} = 300\text{nm}$, der CeO_2 -Pufferschicht $h_{\text{CeO}} = 30\text{nm}$, der SrTiO_3 -Schicht $h_{\text{STO}} = 450\text{nm}$, die Breite der Streifenleiter $d = 500\mu\text{m}$, die Länge der Streifenleiter $l = 5\text{mm}$ sowie die Spaltbreite $s = 2\mu\text{m}$ im Falle der planaren Kapazitätsstrukturen.

In Abb. 60 sind IMD-Messungen bei Raumtemperatur an den Testgeometrien gezeigt. Die Auflösung der Messungen betrug -60dBm . Im Falle der planaren Streifenleiter auf CeO_2 -gepuffertem Saphir sowie auf SrTiO_3 -Filmen sind die IMD-Signale $P_{\pm 3}$ zu vernachlässigen. Der leichte Anstieg oberhalb von Fundamentalleistungen $P_1 > 15\text{dBm}$ wird auf einsetzende Intermodulationsstörungen zurückgeführt, die im Signalanalysator selbst entstehen. Dies konnte durch Testmessungen an Kurzschlüssen nachgewiesen werden.

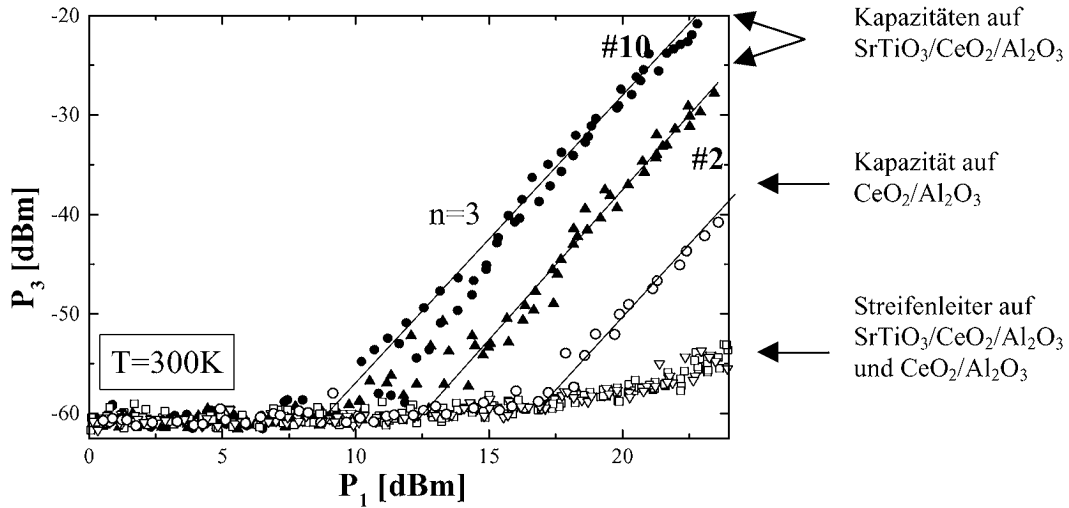


Abb. 60 IMD-Signale P_3 verschiedener Teststrukturen (siehe Abb. 59) als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung P_1 . Diese Messungen wurden zur Bestimmung der Intermodulationsbeiträge bei Raumtemperatur durchgeführt.

Im Falle der planaren Kapazität auf CeO_2 /Saphir ist oberhalb von $P_1 \approx 15\text{dBm}$ ein Anstieg der IMD-Signale zu beobachten. Er ist jedoch wesentlich kleiner ($\Delta P_3 \approx -15\text{dB}$) als die IMD-Signale, die im Falle der zwei SrTiO_3 -Kapazitäten gemessen werden. Letztere können ab einer Fundamentalleistung von $P_1 > 8\text{dBm}$ detektiert werden, d.h. für $P_1 > 8\text{dBm}$ sind IMD-Signale $P_{\pm 3} > -60\text{dBm}$ messbar. Somit ergibt sich für diese Leistungen ein Signalabstand von $\Delta P > -68\text{dB}$, der allerdings mit zunehmender Leistung stark abnimmt, da das IMD-Signal in Übereinstimmung mit der Theorie (Gl. 39) mit der dritten Potenz ansteigt, d.h. $P_{\pm 3} \propto P_1^3$. Wie im folgenden Abschnitt gezeigt wird, nimmt das IMD-Signal mit zunehmendem ϵ , d.h. mit abnehmender Temperatur, zu. Aufgrund dieser ersten Tests und der Temperaturabhängigkeit von ϵ und damit den IMD-Signalen ist davon auszugehen, dass die im weiteren Verlauf der Arbeit an diesen Kapazitäten gemessenen IMD-Signale im Kapazitätsspalt selbst entstehen und nicht im Material der Mikrostreifenleitungen (Gold), in dem unter den Mikrostreifenleitungen befindlichen SrTiO_3 - bzw. CeO_2 -Film oder dem Saphirsubstrat.

4.2.2 Temperaturabhängigkeit der IMD-Signale

Typische Beispiele für die Temperaturabhängigkeit der Leistung der IMD-Signale P_3 sind in Abb. 61 wiedergegeben. Hierbei ist das IMD-Signal P_3 für eine konstante eingestrahlte Fundamentalleistung $P_{1,\text{in}} = 50\text{mW}$ für drei planare Kapazitäten auf den SrTiO_3 -Proben #2, #9

und #11 aufgetragen. Die Fundamentalleistung $P_{1,out}$ wurde so gewählt, dass die Intermodulationssignale P_3 über den gesamten Temperaturbereich im linearen Bereich gemessen werden. Es zeigt sich bei allen drei untersuchten SrTiO_3 -Proben, dass das IMD-Signal zu tiefen Temperaturen stetig zunimmt. Die Höhe der Intermodulationssignale variiert für die einzelnen Proben jedoch stark. Darin unterscheiden sich die Intermodulationssignale von den dielektrischen Materialeigenschaften wie ϵ_{STO} , $\tan\delta_{\text{STO}}$ sowie n_{STO} .

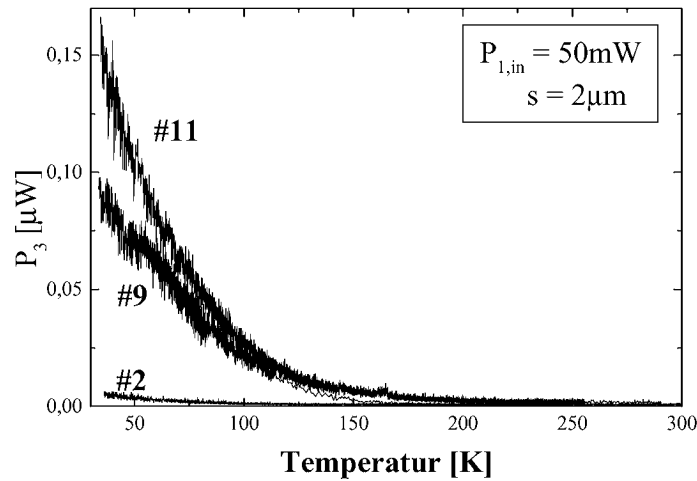


Abb. 61 Temperaturabhängigkeit der Leistung der Intermodulationssignale $P_{3,out}$ von drei SrTiO_3 -Kapazitäten bei einer konstanten eingestrahlten Fundamentalleistung $P_{1,in} = 50\text{mW}$.

Dennoch ist es interessant, mögliche Zusammenhänge der unterschiedlichen Eigenschaften zu untersuchen. Abb. 62 zeigt eine Zusammenstellung der möglichen Korrelationen des IMD-Signals P_3 mit der Gitterverspannung $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$, der Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} , den Verlusten $\tan\delta_{\text{STO}}$ und der Abstimmbarkeit $n_{\text{STO}}(U_{\text{dc}}=100\text{V})$. Da die Messungen relativ umfangreich sind, wurden lediglich drei Proben untersucht. Auch wenn sich sicherlich keine eindeutigen Aussagen aus den drei Punkten abgeleitet werden können, ist doch eine Tendenz festzustellen. Während das IMD-Signal mit zunehmender Verspannung abnimmt, steigt es mit zunehmender Dielektrizitätskonstante, Verlusten und Abstimmbarkeit an.

Zusammen mit der Beobachtung der Analogie in der Temperaturabhängigkeit zwischen P_3 und ϵ kann konstatiert werden, dass das IMD-Signal P_3 mit der Dielektrizitätskonstante zunimmt. Lediglich für Temperaturen $T < 50\text{K}$, unterhalb des Maximums in der $\epsilon_{\text{STO}}(T)$ -Kurve, scheint diese Korrelation nicht mehr zu gelten, und P_3 nimmt trotz abnehmender Dielektrizitätskonstante weiter zu. Letzteres Phänomen konnte in dieser Arbeit nicht erklärt werden. Wir werden uns im weiteren Verlauf dieser Arbeit auf den Temperaturbereich $T > 50\text{K}$ beschränken.

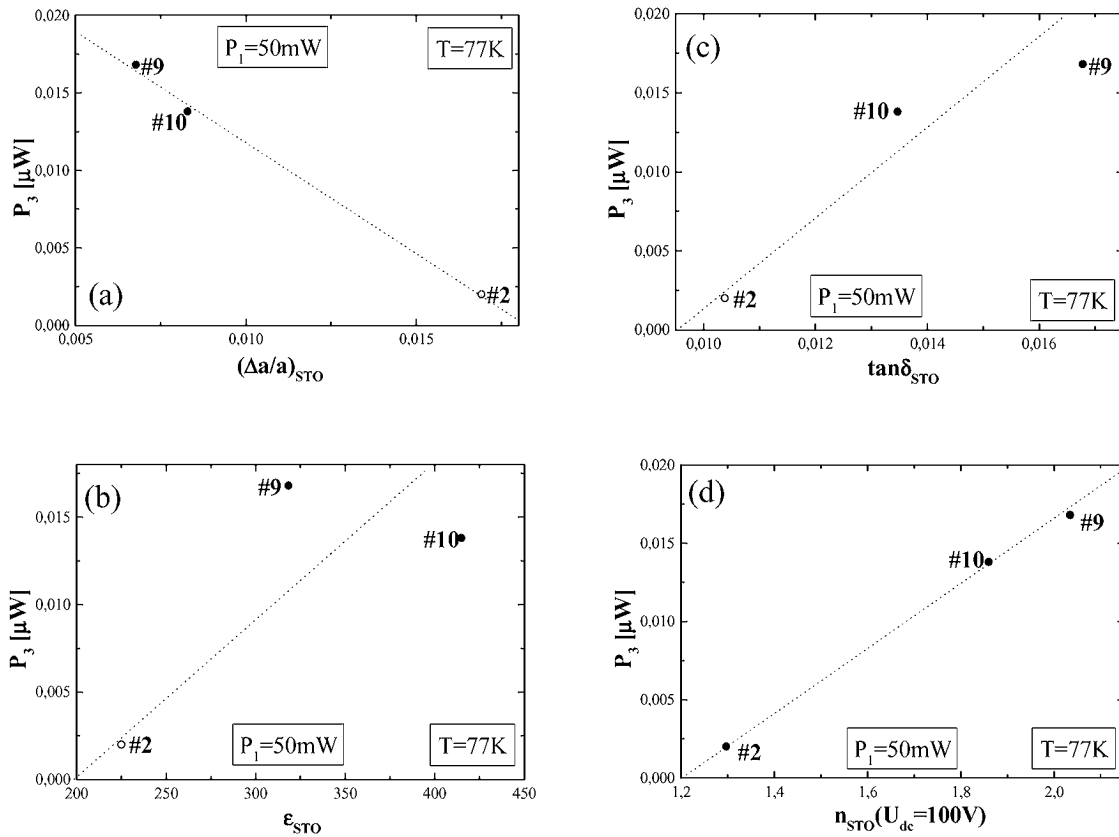


Abb. 62 Abhängigkeit der Leistung des Intermodulationssignals P_3 ($P_{1,\text{in}} = 50\text{mW}$) von (a) der Gitterverspannung des SrTiO_3 -Films $(\Delta a/a)_{\text{STO}}$, (b) der Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} , (c) der Verluste $\tan\delta_{\text{STO}}$ und (d) der Abstimmbarkeit $n_{\text{STO}}(U_{\text{dc}}=100\text{V})$. Alle Messungen wurden bei einer Proben temperatur von $T = 77\text{K}$ durchgeführt.

4.2.3 hf-Leistungs- und dc-Spannungsabhängigkeit der IMD-Signale

Interessant ist nun zum einen die Abhängigkeit des IMD-Signals von der eingestrahnten hf-Leistung P_1 , zum anderen die Beeinflussung der IMD-Signale mittels einer dc-Biasspannung, die, wie in Kapitel 4.1 gezeigt, die Nichtlinearität der Dielektrizitätskonstante unterdrücken und damit das IMD-Signal beeinflussen können sollte.

Abb. 63 zeigt Messungen der Leistung des Intermodulationssignals P_3 der SrTiO_3 -Probe #9 als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung P_1 bei verschiedenen Proben temperaturen, von Raumtemperatur bis zu $T = 4\text{K}$. Die Kurven der Intermodulationssignale lassen sich in zwei Bereiche unterschiedlicher Steigung einteilen:

- (i) Es gibt zunächst einen flacheren ersten Anstieg, der einer Sättigung entgegenstrebt. Das IMD-Signal ist in diesem im Bereich stark temperaturabhängig, für $T = 4\text{K}$ erreicht es seine maximalen Werte, bei Temperaturen von $T > 150\text{K}$ kann es im Rahmen der Messauflösung nicht mehr detektiert werden. Die Steigung im Bereich (1) kann bei tiefen Temperaturen und kleinen Leistungen durch $n_1 \approx 2$ gut beschrieben werden.

- (ii) Es folgt ein schmaler Übergangsbereich, in dem die Steigung sogar ein negatives Vorzeichen bekommen kann.
- (iii) Daran anschließend folgt ein zweiter, steilerer Anstieg des IMD-Signals. Dieser Bereich des IMD-Signals zeigt im Gegensatz zum ersten Anstieg sowie zum Beispiel der Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} oder den Verlusten $\tan\delta_{\text{STO}}$ keine starke Temperaturabhängigkeit. In diesem Bereich der Leistungsabhängigkeit der IMD-Signale lässt sich jeweils eine Steigung $n_2 \approx 3$ an die Messdaten anfitzen.

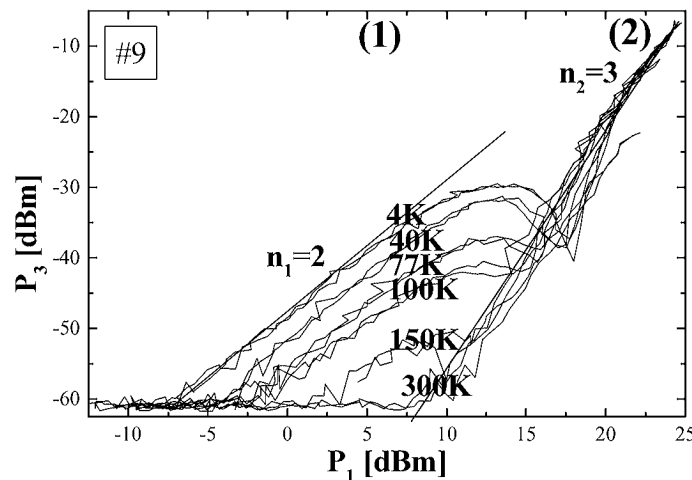


Abb. 63 Messung der Leistung des Intermodulationssignals P_3 als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung P_1 bei verschiedenen Probertemperaturen.

Um die physikalischen Ursachen dieser beiden unterschiedlichen IMD-Bereiche (im folgenden Bereich (1) und (2) genannt) zu analysieren, wurden zwei unterschiedliche Experimente durchgeführt. Zum einen wurde die Nichtlinearität der dielektrischen Eigenschaften durch Anlegen einer dc-Biasspannung unterdrückt, zum anderen wurde die dc-Leitfähigkeit der Kapazitäten bei hohen hf-Leistungen vermessen. Diese Messungen gaben eindeutige Hinweise auf die den IMD-Signalen zugrunde liegenden Mechanismen. Sie sollen im folgenden kurz beschrieben werden.

dc-Spannungsabhängigkeit des IMD-Signals: In Abb. 64 (a) und (b) ist die Leistung der IMD-Signale dritter Ordnung P_3 als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung P_1 für verschiedene, über zwei bias-T-Stücke (siehe Kapitel 3.3.5) angelegte Gleichspannungen U_{dc} für $T = 60\text{K}$ bzw. $T = 4\text{K}$ aufgetragen. Es zeigt sich, dass die IMD-Signale in Bereich (1) durch die angelegte Gleichspannung stark unterdrückt werden. So wird die IMD-Leistung P_3 bei einer Fundamentalleistung von $P_1 = 5\text{dBm}$ durch eine angelegte Gleichspannung von $U_{\text{dc}} = 75\text{V}$ um etwa $\Delta P_3 = -15\text{dB}$ verringert. Das entspricht einer Reduktion der Leistung in den Intermodulationssignalen um einen Faktor 32. Dieses Verhalten ähnelt sehr der Unterdrückung der Nichtlinearität in ϵ_{STO} durch eine angelegte Gleichspannung (siehe Kapitel 4.1.2). Die Absolutwerte für die IMD-Leistungen im Falle der tiefen Temperatur $T = 4\text{K}$ liegen bei vergleichbarer Fundamentalleistung P_1 höher, die Unterdrückung der

Intermodulationssignale durch die angelegte Gleichspannung ähnelt der Unterdrückung bei den zuvor gezeigten Messungen bei $T = 60\text{K}$. So beträgt die Unterdrückung der Intermodulationsleistung P_3 bei einer Fundamentalleistung von $P_1 = 5\text{dBm}$ durch eine angelegte Gleichspannung von $U_{dc} = 75\text{V}$ wiederum etwa $\Delta P_3 = -15\text{dB}$. Dieses Verhalten soll in der Diskussion in Kapitel 4.2.5 eingehend untersucht werden.

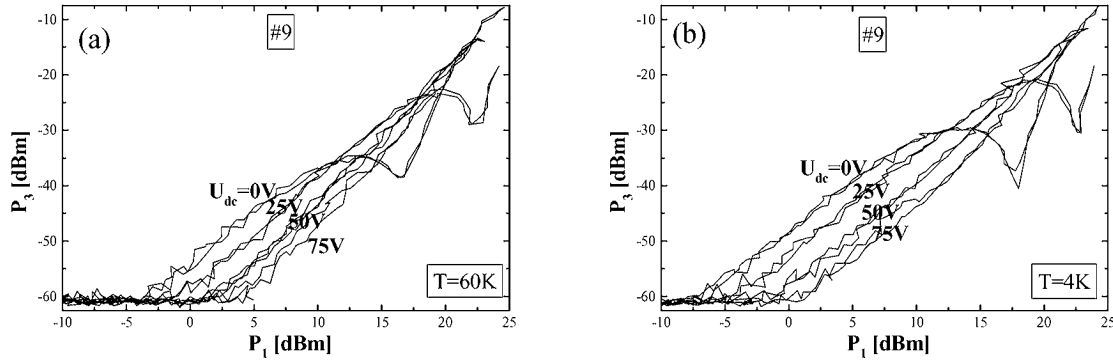


Abb. 64 IMD-Signal P_3 als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung P_1 bei verschiedenen angelegten Gleichspannungen U_{dc} . Die Probentemperatur beträgt (a) $T = 60\text{K}$ bzw. (b) $T = 4\text{K}$.

hf-Leistungsabhängigkeit der Leitfähigkeit: In Abb. 65 ist die Messung des Leitwerts G der SrTiO_3 -Kapazität als Funktion der Fundamentalleistung P_1 aufgetragen. Die Auflösung dieser Messung beträgt $\sim 10^{-14}\text{S}$. Während im Bereich (1) kein Anstieg des Leitwerts detektiert wird, steigt G_{STO} im Bereich (2) nichtlinear mit steigender Leistung an.

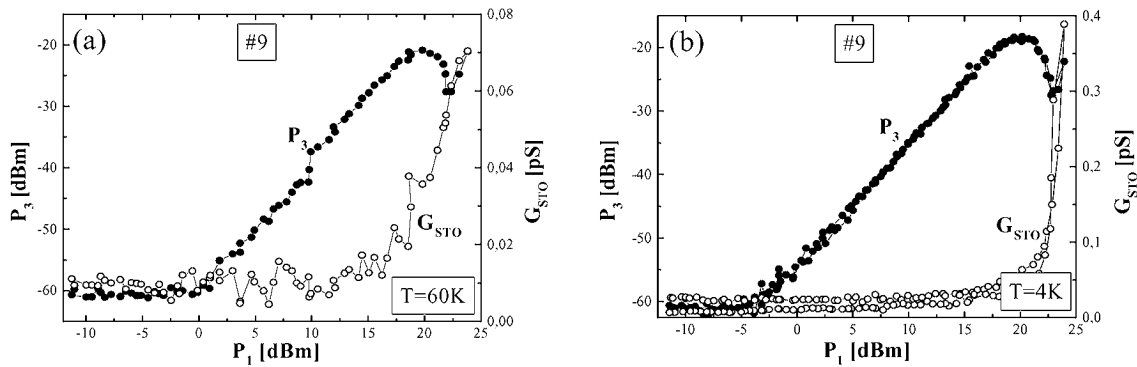


Abb. 65 Messung des IMD-Signals P_3 sowie des dc-Leitwerts G der Kapazität in Abhängigkeit der Fundamentalleistung P_1 für (a) $T = 60\text{K}$ und (b) $T = 4\text{K}$. Die angelegte Gleichspannung zur indirekten Messung des Leitwerts über einen in Serie zur Kapazität geschalteten Widerstand ($R = 1\text{M}\Omega$) betrug jeweils $U_{dc} = 25\text{V}$.

Die Ursache für den zweiten, steileren Anstieg der IMD-Signale scheint also mit einer nichtlinear ansteigenden Anzahl freier Ladungsträger korreliert zu sein. Die genaue Ursache

für die Erzeugung neuer freier Ladungsträger bei hohen Fundamentalleistung P_1 konnte im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht abschließend geklärt werden.

Die Spannungsabhängigkeit der Leistung der Intermodulationssignale in den SrTiO_3 -Kapazitäten in Bereich (1) sowie der starke Anstieg des dc-Leitwerts G im Bereich (2) der IMD-Signale sind entscheidende Hinweise auf dem Weg zu einem Verständnis der Ursachen der IMD-Signale in diesen Strukturen. Daher wird in der Diskussion der Ergebnisse in Kapitel 4.2.5 nochmals auf diese beiden Mechanismen eingegangen.

4.2.4 Intermodulationen höherer Ordnung

Bei vielen Messungen von Intermodulationssignalen in Hochfrequenzbauelementen wird davon ausgegangen, dass lediglich die IMD-Signale dritter Ordnung eine Rolle spielen. Dies ist sicherlich auch meistens gerechtfertigt, da diese IMD-Signale zum einen am dichtesten an den Frequenzen der ursprünglichen Signale liegen, zum anderen üblicherweise die höchsten Intensitäten zeigen. Letzteres muss jedoch nicht unbedingt gelten, schon der ungewöhnliche Verlauf der IMD-Signale $P_{\pm 3}$ weist auf die Präsenz zusätzlicher Mechanismen hin. Des weiteren bieten IMD-Signale höherer Ordnung gegebenenfalls weitere Aufschlüsse auf den Mechanismus, der für das nichtlineare Verhalten verantwortlich ist.

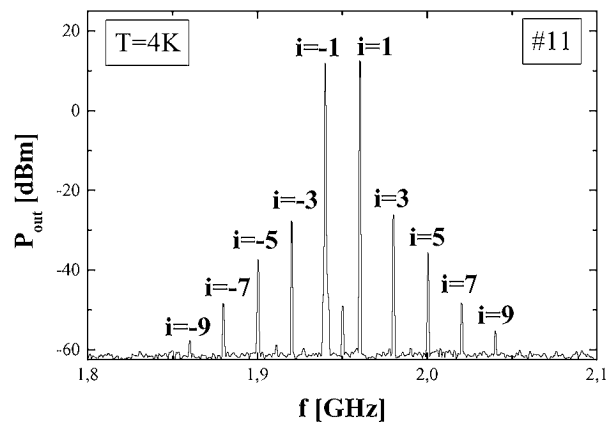


Abb. 66 Frequenzspektrum der SrTiO_3 -Kapazität #10 bei zwei Fundamentalsignalen $f_1 = 1.94\text{GHz}$ sowie $f_2 = 1.96\text{GHz}$ und einer Probertemperatur von $T = 4\text{K}$. Der Wert i bezeichnet die Ordnung des entstehenden Intermodulationssignals bei der Entwicklung einer Potenzreihe (siehe Kapitel 2.6.3). Das kleine zentrale Signal zwischen den fundamentalen Signalen ist ein Artefakt der Messung.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden daher auch die IMD-Signale höherer Ordnung in Betracht gezogen. Abb. 66 zeigt nun einen erweiterten Ausschnitt des Frequenzspektrums, das an einer SrTiO_3 -Kapazität bei Einspeisung zweier Fundamentalsignale ($f_1 = 1.94\text{GHz}$ sowie $f_2 = 1.96\text{GHz}$) gemessen wurde. Der Wert i bezeichnet dabei jeweils die Ordnung des entstehenden IMD-Signals der Potenzreihenentwicklung.

In Abb. 67 sind die Leistungen der in Probe #9 entstehenden IMD-Signale der Ordnungen $i = 3, 5, 7$ und 9 als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung P_1 aufgetragen. Es ist für alle IMD-Signale eine frappierend ähnliche hf-Leistungsabhängigkeit zu beobachten. Scheinbar ist der Verlauf der IMD-Signale der jeweils höheren Ordnung lediglich zu höheren Fundamentalleistungen P_1 hin verschoben.

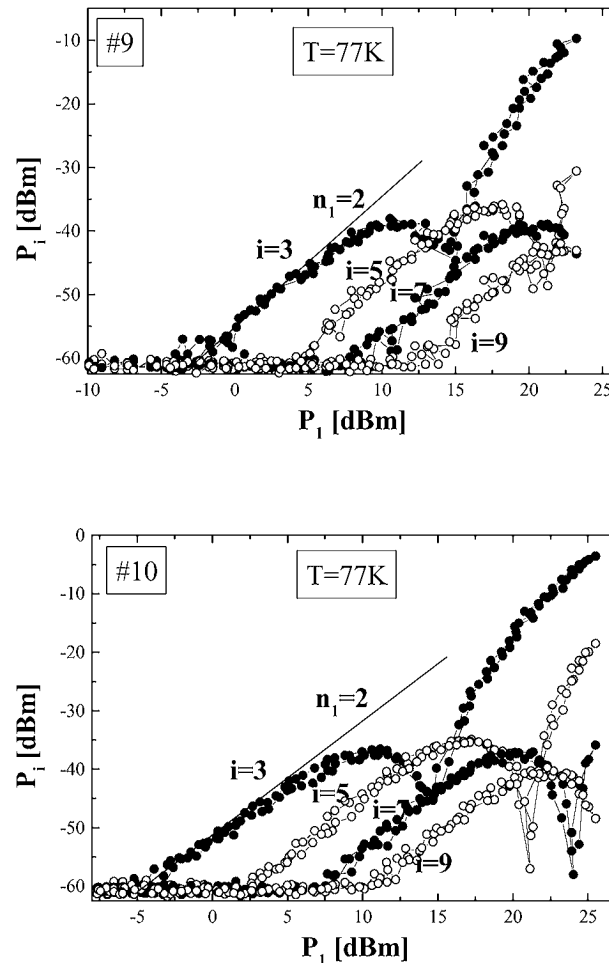


Abb. 67 Messungen der Intermodulationssignale P_i der Ordnungen $i = 3, 5, 7$ und 9 der Proben #9 und #10 als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung P_1 . Die Probentemperatur beträgt für beide Proben $T = 77\text{K}$.

Dabei erreichen die Leistungen der IMD-Signale höherer Ordnung P_i die Leistung des Intermodulationssignals dritter Ordnung P_3 teilweise. Zum Beispiel ist im Bereich $14.5\text{dBm} < P_1 < 17.8\text{dBm}$ die Leistung des IMD-Signals fünfter Ordnung P_5 für Probe #9 größer als die Leistung des IMD-Signals dritter Ordnung P_3 . Des weiteren ist die Steigung aller IMD-Signale für kleine Leistungen kleiner als theoretisch erwartet und insbesondere mit $n_1 \approx 2$ sehr ähnlich. Theoretisch ist eine Steigung $n_i = i$ für das i -te IMD-Signal vorausgesagt.

Im Falle der in SrTiO_3 -Kapazitäten entstehenden Intermodulationssignale kann also keinesfalls von einer generellen Dominanz des Intermodulationssignals dritter Ordnung ausgegangen werden, so dass die Intermodulationssignale höherer Ordnung nicht generell

vernachlässigt werden können. Bei der Bewertung und Erklärung der in SrTiO₃-Filmen entstehenden Intermodulationen müssen diese höheren Ordnungen daher auf jeden Fall beachtet und in die Messungen und Kalkulationen dieser Signale miteinbezogen werden.

Betrachten wir zum Beispiel die messbare Gesamtintermodulationsleistung P_{ges} aller gemessenen Intermodulationssignale P_i ($i = 3, 5, 7, 9$):

$$(Gl. 73) \quad P_{ges} = \sum_{i=1}^4 P_{2i+1},$$

so finden wir eine hf-Leistungsverträglichkeit, die der Leistungsverträglichkeit der einzelnen Intermodulationssignale (z. B. P_3 in Abb. 68) ähnelt und genauso in zwei Bereiche unterschiedlicher Steigung eingeteilt werden kann. Ein Unterschied lässt sich insofern feststellen, als dass der Zwischenbereich negativer Steigung zwischen Bereich (1) und (2) durch einen Bereich mit konstanter IMD-Leistung ersetzt wird. Dieses ist insofern zu erwarten, da die Maxima der Leistung der nächsthöheren für die unterschiedlichen Intermodulationsordnungen jeweils mit dem Zwischenbereich der vorhergehenden Ordnung zusammenfallen. In Abb. 68 (b) sind die Verläufe der Gesamt-IMD-Leistung P_{ges} sowie der IMD-Leistung P_3 der Probe #10 für $T = 60K$ und $U_{dc} = 0V$ sowie $U_{dc} = 75V$ aufgetragen. Es zeigt sich, dass die Verläufe von P_3 und P_{ges} in den Bereichen (1) und (2) nahezu identisch sind (hier dominiert P_3) und nur im Zwischenbereich voneinander abweichen. Insbesondere sind die Steigungen $n_1 = 2$ (im Bereich (1)) sowie $n_2 = 3$ (im Bereich (2)) sowie im Falle einer angelegten Spannung von $U_{dc} = 75V$ gut sichtbar. Im Zwischenbereich scheint die IMD-Leistung insgesamt konstant zu bleiben, es findet hier die Umverteilung der Energiebeiträge zwischen den IMD-Signalen unterschiedlicher Ordnung statt. Der hierfür verantwortliche Mechanismus ist nicht bekannt. Allerdings ist hiermit die unerklärliche Abnahme des einzelnen IMD-Signals mit zunehmender hf-Leistung im Zwischenbereich relativiert.

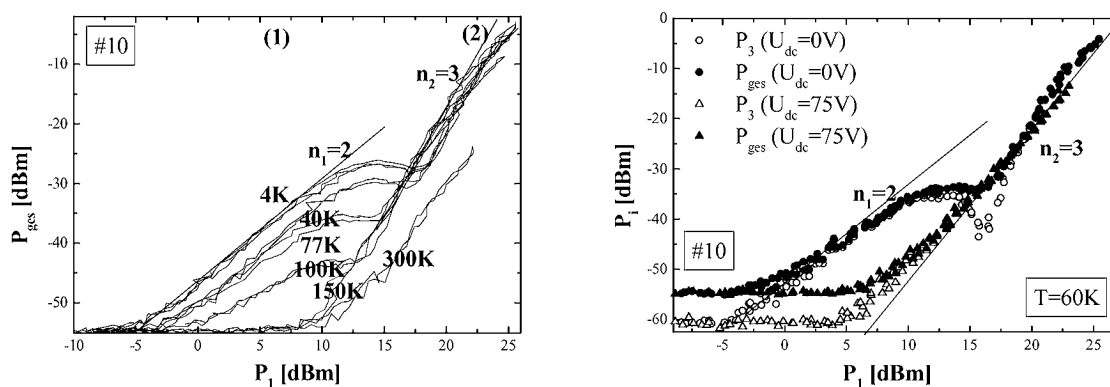


Abb. 68 (a) Summierte Gesamtleistung der IMD-Signale P_{ges} der Probe #10 als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung P_1 bei unterschiedlichen Probertemperaturen und (b) Leistung des Einzelsignals P_3 sowie der summierten Leistung P_{ges} der Probe #10 als Funktion der ausgehenden Fundamentalleistung P_1 für die dc-Biasspannungen $U_{dc} = 0V$ und $75V$. Es sind jeweils die Steigungen $n_1 = 2$ bzw. $n_2 = 3$ angefügt.

4.2.5 Diskussion

In den vorangegangenen Teilkapiteln fanden Untersuchungen der strukturellen, dielektrischen sowie der nichtlinearen Mikrowelleneigenschaften der SrTiO₃-Filme statt. Zwischen den strukturellen und dielektrischen Eigenschaften wurden interpretierbare Zusammenhänge gefunden. Der Zugang zum Verständnis der nichtlinearen Mikrowelleneigenschaften sollte allgemeinen Überlegungen zufolge über die nichtlinearen Anteile der dielektrischen Eigenschaften erfolgen, die grundsätzlich als Ursache für die nichtlinearen Intermodulationsstörungen gelten. Um diese nichtlinearen Anteile einzeln untersuchen zu können, separieren wir die Kapazität $C_{STO}(T, U_{dc})$ in einen linearen Beitrag $C_{STO}(T)$ und einen temperatur- sowie spannungsabhängigen nichtlinearen Anteil ΔC_{STO} :

$$(Gl. 74) \quad C_{STO}(T, U_{dc}) = C_{STO}(T) - \Delta C_{STO}(T, U_{dc}).$$

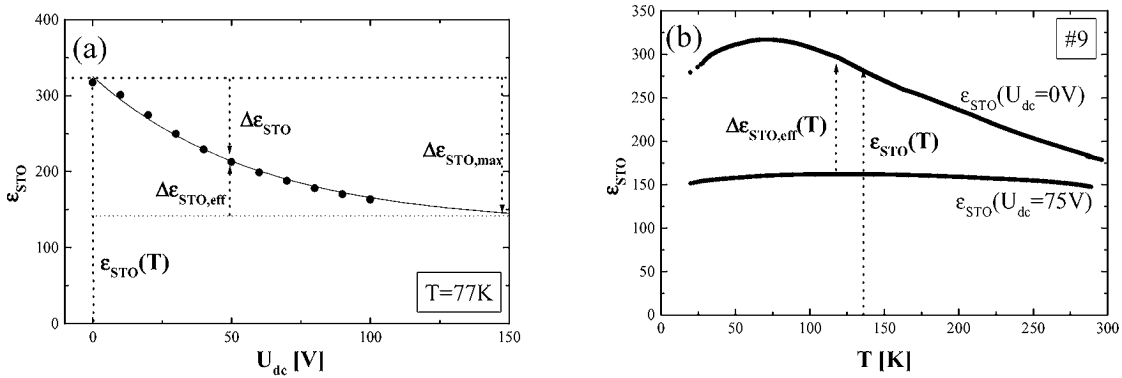


Abb. 69 (a) Aufteilung der Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} in einen linearen und einen nichtlinearen Anteil. Die Probentemperatur bei dieser Messung beträgt $T = 77\text{K}$. (b) Darstellung des linearen, rein temperaturabhängigen Anteils $\epsilon_{STO}(T)$ der Dielektrizitätskonstante sowie die Definition der effektiven Dielektrizitätskonstante $\Delta\epsilon_{STO,eff}$.

Dieser Ansatz ist direkt übertragbar auf die Dielektrizitätskonstante ϵ_{STO} (siehe Abb. 69 (a)):

$$(Gl. 75) \quad \epsilon_{STO}(T, U_{dc}) = \epsilon_{STO}(T) - \Delta\epsilon_{STO}(T, U_{dc}).$$

Zur besseren Vergleichbarkeit der nichtlinearen Anteile der Dielektrizitätskonstante mit den Ergebnissen der Messungen der IMD-Signale werden im Folgenden die auf das asymptotisch angenäherte Maximum $\Delta\epsilon_{STO,max}$ normierte Dielektrizitätskonstante:

$$(Gl. 76) \quad \Delta\epsilon_{STO,rel}(T, U_{dc}) = \frac{\Delta\epsilon_{STO}(T, U_{dc})}{\Delta\epsilon_{STO,max}}$$

und die normierte, abstimmbare Leistung der Intermodulationssignale P_i :

$$(Gl. 77) \quad P_{i,rel}(U_{dc}) = \frac{P_i(U_{dc})}{P_i(0V)}, \quad i = 3, 5, 7, \dots$$

verwandt. Die normierte effektive Dielektrizitätskonstante (siehe Abb. 69), die in der Probe vorhanden ist, ist dann gegeben durch:

$$(Gl. 78) \quad \Delta\epsilon_{STO,eff}(U_{dc}) = \frac{\Delta\epsilon_{STO,max} - \Delta\epsilon_{STO}(U_{dc})}{\Delta\epsilon_{STO,max}} = 1 - \Delta\epsilon_{STO,rel}.$$

Des weiteren muss zur Auswertung der IMD-Signale darauf geachtet werden, dass lediglich Werte im ersten Anstieg bei dieser Betrachtung einfließen, da dieser, wie in Kapitel 4.2.3 gezeigt, durch die nichtlinearen dielektrischen Eigenschaften und nicht durch die einsetzende Leitfähigkeit verursacht zu sein scheint. Der Leistungsbereich P_1 für die Auswertung wurde daher so gewählt (siehe Abb. 70), dass die relativen Leistungen $P_{i,rel}$ ($i = 3, 5, 7$) im Bereich (1), also der ersten Steigung des Intermodulationssignals gemessen wurden. So wurde im vorliegenden Falle (Probe #9) eine hf-Leistung von $P_1 = 5, 10, 15\text{dBm}$ für die Bestimmung der Werte $P_{i,rel}$ für $i = 3, 5$ bzw. 7 gewählt.

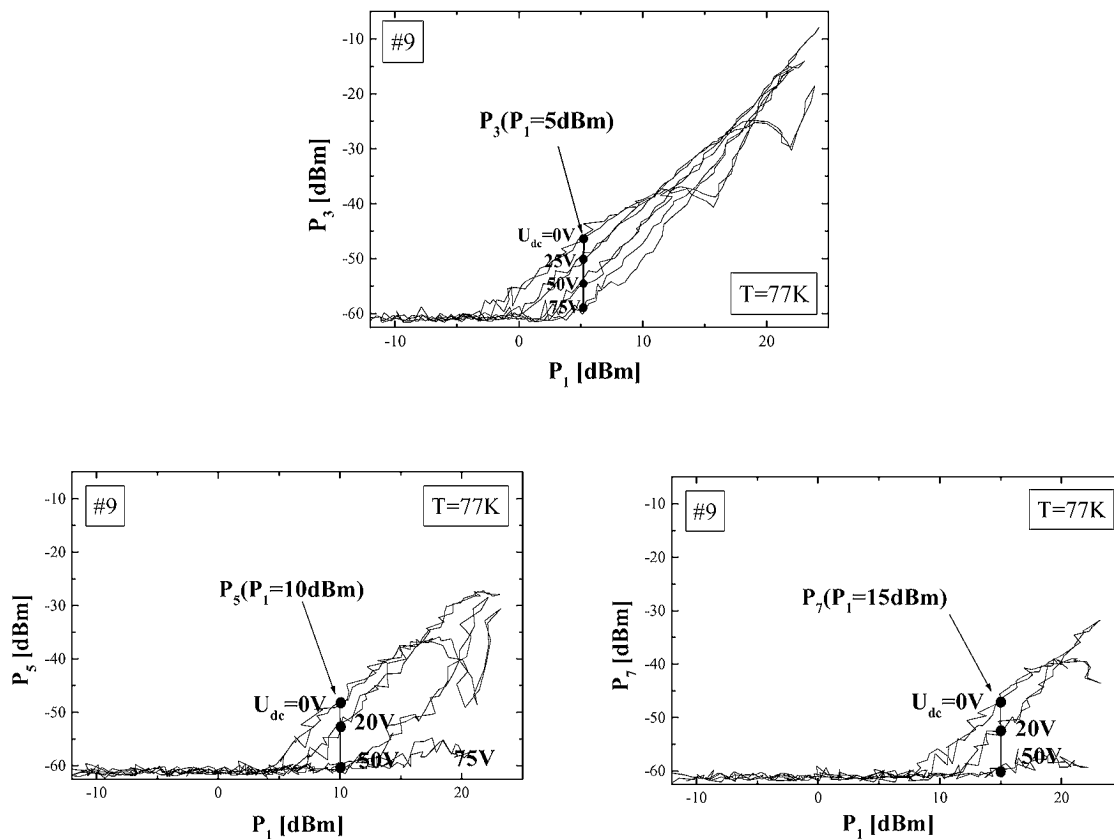


Abb. 70 Abstimmbarkeit der Leistung des Intermodulationssignals dritter Ordnung P_3 , fünfter Ordnung P_5 sowie siebter Ordnung P_7 . Es wurde der lineare Bereich des ersten Anstiegs der Intermodulationen für die Bestimmung von $P_3(U_{dc})$, $P_5(U_{dc})$ und $P_7(U_{dc})$ im Korrelationsplot Abb. 71 gewählt.

Abb. 71 zeigt nun den aufschlussreichen Vergleich zwischen der Abstimmbarkeit der normierten effektiven Dielektrizitätskonstante $\Delta\epsilon_{STO,eff}$ der Abstimmbarkeit der normierten IMD-Signale $P_{i,rel}$ der Ordnungen $i = 3, 5$ und 7 für zwei Proben. Interessanterweise zeigen

alle Messungen den theoretisch erwarteten Zusammenhang, allerdings für den effektiven nichtlinearen Anteil:

$$(Gl. 79) \quad P_{i,rel} \propto \Delta\epsilon_{STO,eff}^i, \quad i = 3, 5, 7...$$

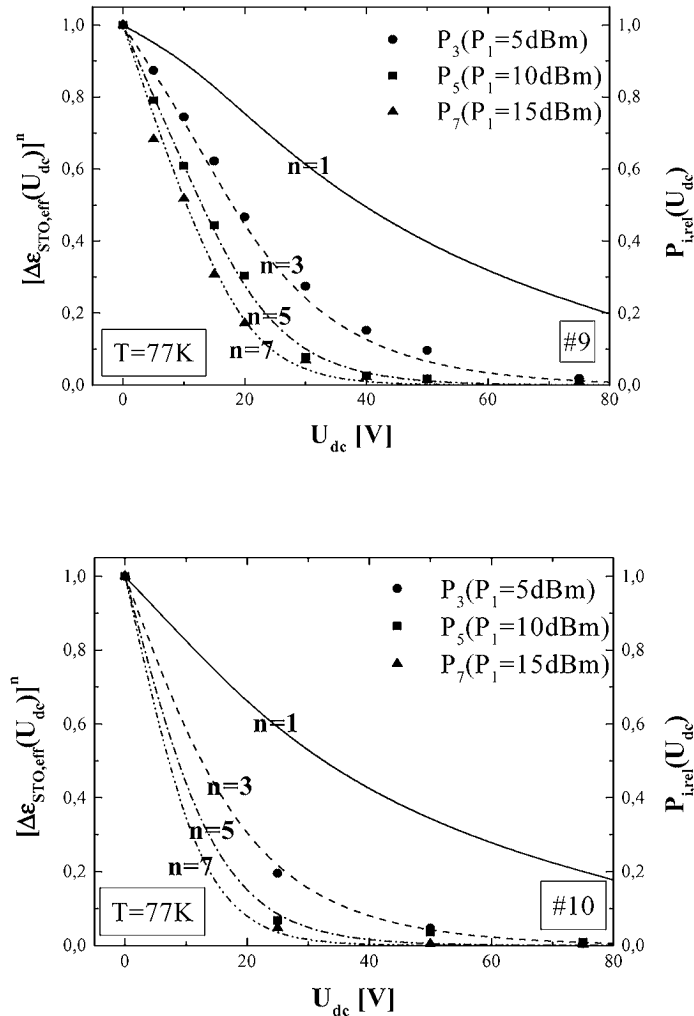


Abb. 71 Vergleich der Spannungsabhängigkeiten der relativen Leistungen der IMD-Signale $P_{i,rel}$ und n -ten Potenzen der normierten effektiven Dielektrizitätskonstante $\Delta\epsilon_{STO,eff}$ für zwei planare SrTiO₃-Kapazitäten (#9 und #10) bei $T = 77K$.

Dieses Ergebnis demonstriert:

- (i) Der nichtlineare Beitrag $\Delta\epsilon_{STO}$ ist für die erste Entstehung der IMD-Signale P_i (d.h. im Bereich (1) der IMD-Leistungsabhängigkeit) verantwortlich. Eine Reduktion der effektiv wirksamen Nichtlinearität führt direkt zu einer Reduktion der IMD-Signale aller messbaren Ordnungen und umgekehrt.
- (ii) Im Gegensatz zu den Steigungen der IMD-Signale in den Leistungsabhängigen IMD-Messungen (Abb. 63, Abb. 64) zeigen diese Analysen, dass die entstehenden IMD-Signale durchaus durch eine Taylorentwicklung auf der Basis der nichtlinearen Beiträge der

Dielektrizitätskonstante $\Delta\epsilon_{\text{STO}}$ beschrieben werden kann. Gehen wir aus von den allgemeinen Gleichungen (siehe Kapitel 2.6.3):

$$(Gl. 80) \quad \epsilon_{\text{STO}}(T, U_{\text{dc}}) = \sum_{i=1}^{\infty} k_{\epsilon,i}(T) \cdot U_{\text{dc}}^{i-1}$$

mit den filmspezifischen temperaturabhängigen Faktoren $k_{\epsilon,i}(T)$. Aufgrund der Symmetrie:

$$(Gl. 81) \quad \Delta\epsilon_{\text{STO}}(U_{\text{dc}}) = \Delta\epsilon_{\text{STO}}(-U_{\text{dc}})$$

wurden lediglich die Terme gerader Ordnung berücksichtigt. Beschränken wir uns auf die Entwicklung der ersten drei nichtlinearen Terme, gilt allgemein für ein elektrisches Feld $\vec{E}$, das auf die SrTiO₃-Kapazität einwirkt:

$$(Gl. 82) \quad \bar{\epsilon}_{\text{STO}}(T, \vec{E}) = \bar{k}_{\epsilon,1}(T) + \bar{k}_{\epsilon,3}(T) \cdot \vec{E}^2 + \bar{k}_{\epsilon,5}(T) \cdot \vec{E}^4 + \bar{k}_{\epsilon,7}(T) \cdot \vec{E}^6$$

Dabei können die Dielektrizitätskonstante $\bar{\epsilon}_{\text{STO}}$ und damit die Vektoren $\bar{k}_{\epsilon,i}$ auch im Falle eines kubischen Kristallgitters durchaus unterschiedliche Einträge für die verschiedenen Kristallrichtungen (a-, b- und c-Achse) enthalten (siehe Kapitel 4.1.5). Mit den beiden eingestrahnten Fundamentalsignalen:

$$(Gl. 83) \quad \vec{E}(t) = \vec{E}_0 \cdot (\cos \omega_1 t + \cos \omega_2 t),$$

ergibt sich dann eine Verschiebungsfeldstärke im SrTiO₃:

$$(Gl. 84) \quad \vec{D}(T, \vec{E}) = \bar{\epsilon}_{\text{STO}}(\vec{E}) \cdot \vec{E} = \bar{k}_{\epsilon,1} \cdot \vec{E} + \bar{k}_{\epsilon,3} \cdot \vec{E}^3 + \bar{k}_{\epsilon,5} \cdot \vec{E}^5 + \bar{k}_{\epsilon,7} \cdot \vec{E}^7$$

In Analogie zu der Entwicklung von IMD-Signalen z. B. in Hochtemperatursupraleitern [Hein99] lässt sich hieraus die Leistungsabhängigkeit ableiten:

$$(Gl. 85) \quad P_{\pm i} = P_1^i, \quad i = 3, 5, 7, \dots$$

Als mögliche Ursache des zweiten Anstieg der IMD-Signale in Bereich (2) der leistungsabhängigen IMD-Messungen wurde in Kapitel 4.2.3 eine erhöhte dc-Leitfähigkeit der SrTiO₃-Schichten gefunden. Eine genaue physikalische Ursache konnte nicht bestimmt werden.

Eine experimentelle Bestimmung der Leitfähigkeit bei hohen Frequenzen (z. B. $f \approx 2\text{GHz}$) mit entsprechenden Auflösungen ($G_{\text{STO}} < 1\text{pS}$) ist leider nicht möglich. Daher kann der im Rahmen dieser Arbeit gemessene dc-Leitwert G_{dc} lediglich als Indikator für die Erzeugung freier Ladungsträger bei hohen hf-Leistungen dienen. Es ist aber nicht davon ausgehen, dass er den Leitwert bei hohen Frequenzen exakt beschreibt ($\sigma_{\text{dc}} \neq \sigma_{f=2\text{GHz}}$). Es lässt sich aber auf jeden Fall feststellen, dass die Steigung von $P_{\sigma,3}$ in allen im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen etwa den Wert $n_2 \approx 3$ erreicht. Messungen dieses Steigungsverhaltens für IMD-Signale höherer Ordnung waren ebenfalls aufgrund der Leistungsbegrenzung nicht möglich. Somit entspricht die gemessene Steigung in diesem Bereich der theoretischen Erwartung.

Insgesamt lässt sich feststellen, dass im Rahmen dieser theoretischen Überlegungen und Berechnungen die Mechanismen der beiden unterschiedlichen Bereiche (1) und (2) der Leistungsverträglichkeitsmessungen für alle IMD-Signale P_i ($i=3,5,7,\dots$) an den untersuchten SrTiO_3 -Schichten erklärt werden konnten. Dies geschah unter der Berücksichtigung einer Nichtlinearität der Dielektrizitätskonstante $\bar{\epsilon}_{\text{STO}}$ (Bereich (1)) bzw. der Leitfähigkeit $\bar{\sigma}_{\text{STO}}$ (Bereich (2)). Der kleine Zwischenbereich negativer Steigung kann auf einen Umverteilungsmechanismus der Leistung innerhalb der IMD-Signale verschiedener Ordnungen zurückgeführt werden. Eine genaue Bestimmung der physikalischen Ursachen für diese Umverteilung konnte im Rahmen dieser Arbeit allerdings nicht erreicht werden.

4.3 Optimierte SrTiO_3 -Kapazitäten für die Anwendung

Nach der Untersuchung der linearen (Kapitel 4.1) und nichtlinearen (Kapitel 4.2) dielektrischen Materialeigenschaften der gesputterten SrTiO_3 -Schichten wird in diesem Kapitel auf den Einfluss des Kapazitätsdesigns auf die Abstimmbarkeit, die Mikrowellenverluste und den resultierenden Qualitätsfaktor diskutiert. Ziel ist die Optimierung von Varaktoren für potentielle Mikrowellenanwendungen.

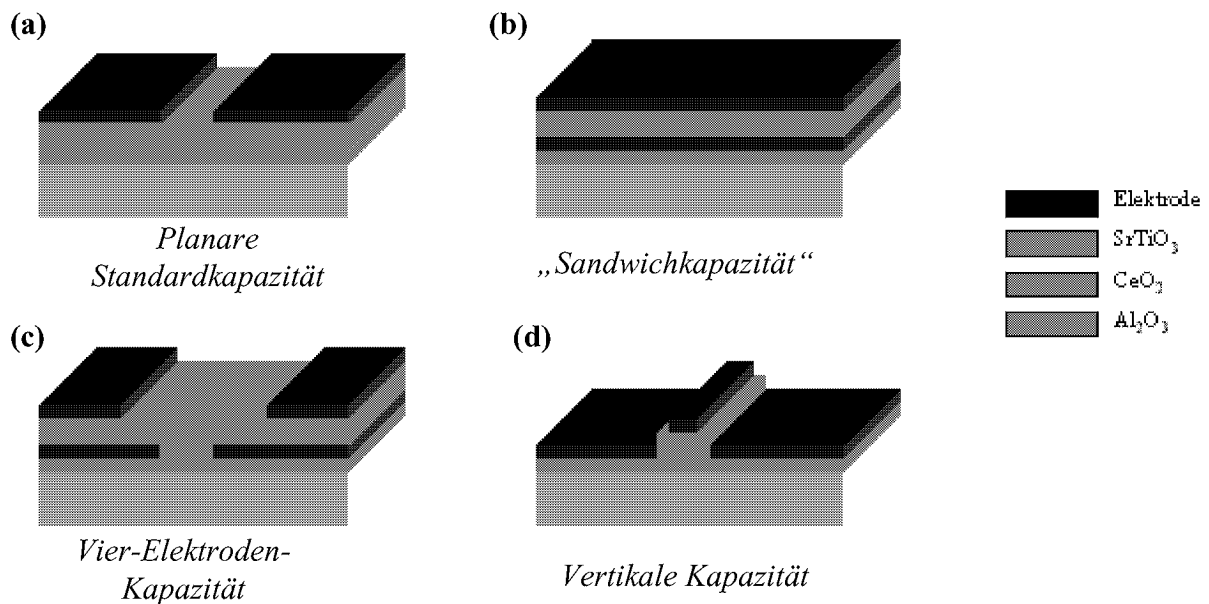


Abb. 72 Skizzen alternativer Kapazitätsdesigns: (a) planare Standardkapazität, (b) „Sandwich-Kapazität“, (c) Vier-Elektroden-Kapazität [Prud98] und (d) im Rahmen dieser Arbeit entwickelte vertikale Kapazität [Ott02].

Folgende generelle Anforderungen an optimierte Kapazitätsgeometrien haben sich bei dieser Studie ergeben:

- (i) Das SrTiO_3 sollte auf die „aktiven“ Bereiche des Bauelements beschränkt sein, in denen die abstimmbaren Eigenschaften des Materials genutzt werden. Dadurch können Verluste, die in anderen Strukturbereichen in Folge der hohen dielektrischen Verluste $\tan\delta_{\text{STO}}$ unnötigerweise entstehen, reduziert werden.
- (ii) Die Kapazitätsspaltbreite sollte im Rahmen der Strukturierungsmöglichkeiten so klein wie möglich gehalten werden, um hohe Feldstärken und damit hohe Abstimmbarkeiten n bei kleinen angelegten Gleichspannungen U_{dc} zu erreichen.
- (iii) Für den Fall der Kombination von SrTiO_3 mit Hochtemperatursupraleitern sollte eine SrTiO_3 -Beschichtung im Bereich der Supraleiterschicht unterbleiben. Es wurde gezeigt [Ott00], dass Doppelschichten aus $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ und SrTiO_3 sich in ihren Eigenschaften negativ beeinflussen.

In Abb. 72 sind einige alternative Kapazitätsdesigns gezeigt, die für die Integration in möglichen Anwendungen abstimmbarer Kapazitäten in Frage kommen und zum Teil im Rahmen dieser Arbeit getestet wurden:

- (a) Die meistgenutzte Struktur ist die *planare Standardkapazität*. Diese relativ einfache Struktur wurde von uns für die meisten Messungen in den vorhergehenden Kapiteln benutzt. Hier befindet sich jedoch entweder das SrTiO_3 unter der gesamten Bauelementstruktur und verursacht unnötige Verluste, oder die Kapazität muss mittels der sogenannten „Flip-Chip“-Methode auf das Bauelement aufgedrückt werden, was Unsicherheiten in der Kontaktierung und Ungenauigkeit in der Positionierung mit sich bringt. Wichtiger ist jedoch hier, dass die minimalen Abmessung für diese Struktur bei ausreichenden Schichtdicken im μm -Bereich liegen. Ausgedehnte Kapazitäten mit Spaltbreiten von $s = 1\mu\text{m}$ zeigten üblicherweise schnell Kurzschlüsse bzw. Überschlüsse bei hohen dc-Biasspannungen. Des weiteren haben wir in dieser Arbeit gesehen, dass die effektive Spaltbreite in dieser Konfiguration mit $s_{\text{eff}} = s + \Delta s$ und $\Delta s \approx 0.8\mu\text{m}$ (siehe Kapitel 4.1.4) effektiv breiter und somit das resultierende effektive elektrische Feld kleiner ist.
- (b) Eine andere Geometrie bietet eine Art „*Sandwichkapazität*“. Hier befindet sich das SrTiO_3 zwischen den beiden Elektroden. Vorteile dieser Struktur liegen in der einfachen Herstellung und der sehr großen Kapazität, Nachteile bieten die schlechte Kontaktierbarkeit der unteren Elektrode und das üblicherweise nicht-epitaktische Wachstum des SrTiO_3 auf der Elektrode (eine Ausnahme bilden supraleitende Elektroden wie das $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, hierbei ergeben sich jedoch große Probleme an den Grenzschichten zwischen Supraleiter und Ferroelektrikum bezüglich der Einstellung der Sauerstoffstöchiometrie und gegebenenfalls durch Kurzschlüsse z. B. durch „Pinholes“ [Ott00]).

- (c) Eine sehr geschickte Lösung bietet die *Vier-Elektroden-Kapazität* [Prud98]. Sie stellt eine Weiterentwicklung der „Sandwichkapazität“ dar. Hier wird zunächst eine Elektrode z. B. aus Platin deponiert, ein Spalt strukturiert und anschließend das Ferroelektrikum über die gesamte Struktur abgeschieden. Auf das Ferroelektrikum wird eine zweite Elektrode mit größerem Spalt abgeschieden und strukturiert. Man erhält so gegenüber der Sandwichstruktur erhöhte Chancen auf epitaktisches Wachstum im Elektrodenspalt und eine einfachere Kontaktierung. Nachteil dieser Methode ist die schlechte Integrierbarkeit in Hochfrequenzbauelemente, es muss wieder auf die „Flip-Chip“-Methode zurückgegriffen werden, die schlechte Kontaktierung und relativ ungenaue Positionierung zur Folge hat. Des weiteren geschieht die Kontaktierung der entscheidenden unteren Elektroden kapazitiv über die Topelektroden. Somit sind in diesem Fall im Prinzip drei Kapazitäten in Reihe geschaltet. Dies erhöht die Verluste unnötig, insbesondere ergeben sich für die Kontaktkapazitäten ähnliche Probleme wie sie für die Sandwichstruktur vorliegen.
- (d) Eine konsequente Weiterentwicklung dieses Designs bildet die *vertikale Kapazität*, die im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde [Ott02]. Hier ist das SrTiO_3 auf den Spalt der Kapazität beschränkt. Die beiden seitlichen Elektroden bilden zusammen mit einer Topelektrode, die vorteilhaft zur Abstimmung genutzt werden kann, die Gesamtkapazität. Vorteile sind eine schmale Spaltbreite des Kapazitätsspalts, der im Gegensatz zur planaren Geometrie vollständig mit SrTiO_3 gefüllt ist, und daraus resultierende hohe Abstimmbarkeiten bei kleinen elektrischen Feldern, die Möglichkeit der Elektrodenabscheidung in Standardprozessen direkt auf das Substrat (wichtig unter anderem bei der Kombination mit Hochtemperatursupraleitern) sowie die Beschränkung des mit relativ hohen Verlusten behafteten SrTiO_3 auf den Spalt der Kapazität.

Da die Geometrie der vertikalen Kapazität die oben gestellten Anforderungen aus der Anwendung scheinbar am besten erfüllt, sollen im folgenden die Realisierung einer solchen Struktur überprüft und ihre Eigenschaften mit denen planarer Standardkapazitäten verglichen werden. Dazu wird in Kapitel 4.3.1 zunächst auf die Besonderheiten in der Herstellung vertikaler Kapazitäten eingegangen. In Kapitel 4.3.2 werden die dielektrischen sowie abstimmbaren Eigenschaften der Kapazität untersucht. Kapitel 4.3.3 bietet eine Diskussion der präsentierten Ergebnisse sowie die Entwicklung eines Modells zur Beschreibung ihrer dielektrischen Eigenschaften.

4.3.1 Herstellung vertikaler Kapazitäten

Abb. 73 zeigt zusammenfassend die wichtigsten Depositions- sowie Strukturierungsschritte sowohl der planaren als auch der vertikalen Kapazität ausgehend von der auf das CeO_2 -gepufferte Substrat (Al_2O_3) gesputterten SrTiO_3 -Schicht (siehe Kapitel 3.1.2).

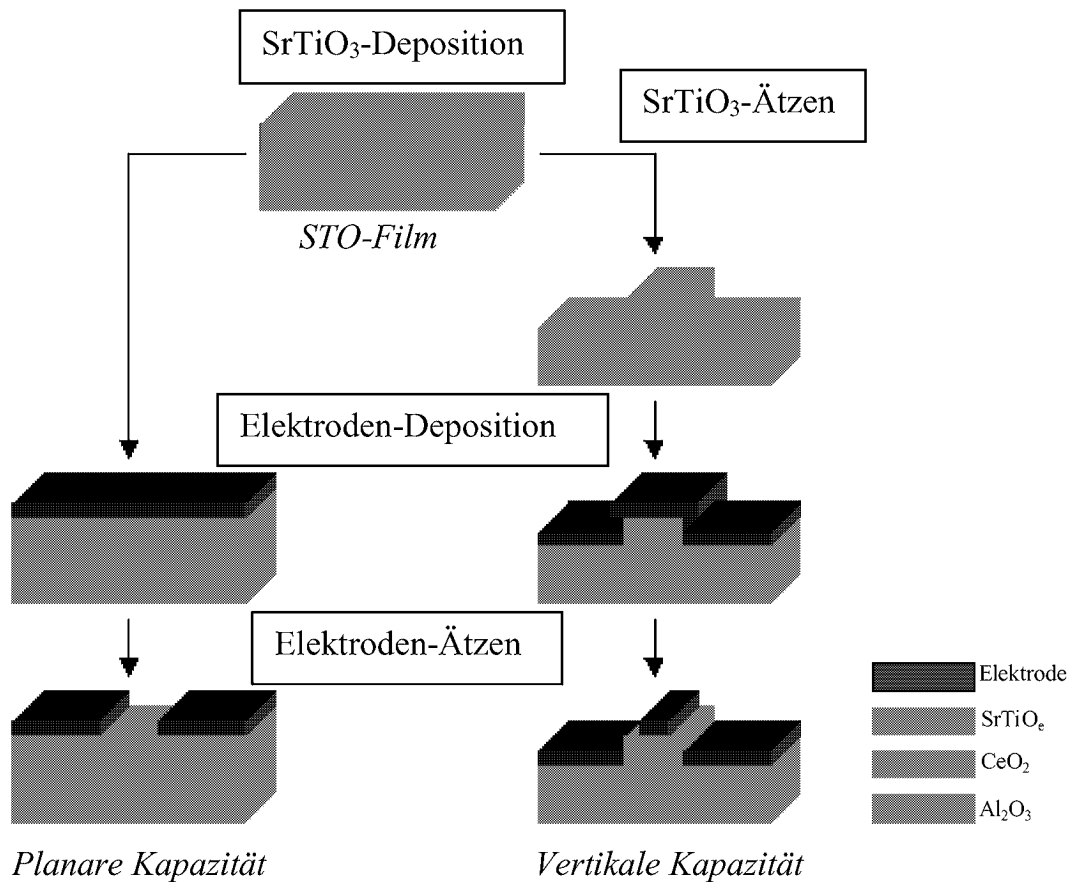


Abb. 73 Diagramm der wichtigsten Schritte der Strukturierungsabläufe planarer Standardkapazitäten und der neu entwickelten vertikalen Kapazitäten. Im Vergleich zum Standarddesign ist mit der im ersten Schritt nötigen Strukturierung des STO-Films ein weiterer Arbeitsschritt erforderlich. Das Freiätzen der Elektroden im Falle der vertikalen Kapazität (letzter Schritt) erfolgt mittels IBE-Ätzen unter flachem Winkel.

Für die Herstellung der vertikalen SrTiO₃-Kapazität wird in einem ersten Schritt das auf das CeO₂-gepufferte Saphirsubstrat abgeschiedene SrTiO₃ direkt nach der Deposition strukturiert. Hierbei wird beinahe das gesamte Substrat wieder freigeätzt, lediglich ein schmaler SrTiO₃-Streifen der vorgegebenen Spaltbreite $s = 2\mu\text{m} \dots 10\mu\text{m}$ und einer Länge $d > 500\mu\text{m}$ bleibt erhalten. Auf das mit derartigen SrTiO₃-Streifen versehene Substrat wird nun das Elektrodenmaterial abgeschieden. Anschließend wird das Elektrodenmaterial in einem Streifen von $l = 10\text{mm}$ Länge und einer Breite von $d = 500\mu\text{m}$ senkrecht zum SrTiO₃-Streifen strukturiert. Dabei formt es automatisch einen Kapazitätsspalt, der mit dem SrTiO₃ gefüllt ist.

Abb. 74 zeigt zwei Rasterelektronenmikroskopaufnahmen eines Kupferstreifens, der senkrecht zu dem zuvor präparierten SrTiO₃-Streifen strukturiert wurde.

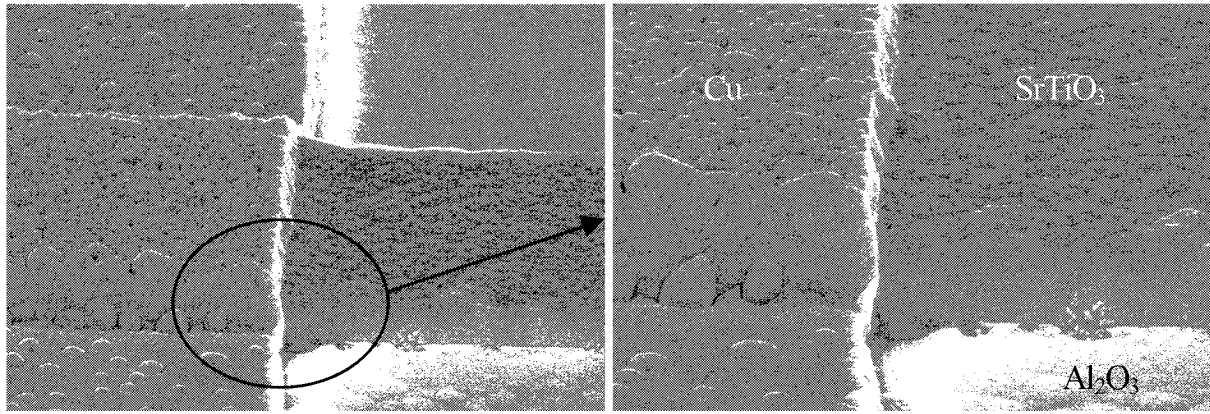


Abb. 74 Rasterelektronenmikroskopaufnahmen einer vertikalen Kapazität vor der Freizätzung der Kapazitätsflanken.

In Abb. 74 ist zu sehen, dass der Elektrodenstreifen am Übergang zwischen Substrat und SrTiO₃-Streifen nicht abreißt, obwohl die Flanken des SrTiO₃-Streifens nach der Optimierung des Strukturierungsverfahrens eine Steilheit von mehr als 85° aufweisen. Für die Bildung einer Kapazitätsgeometrie ist es daher nötig, die Flanken des SrTiO₃-Streifens separat freizuätzen, um elektrische Kurzschlüsse in der Kapazität zu verhindern. Das geschieht mittels Ionenstrahlätzen (IBE) unter einem Winkel von 87°, wobei die Probe langsam um die eigene Achse rotiert wird, um ein gleichmäßiges und vollständiges Freiätzen zu gewährleisten. In Abb. 75 sind zwei Rasterelektronenmikroskopaufnahmen einer solchen freigeätzten vertikalen Kapazität zu sehen. Die beiden Elektroden sowie die Topelektrode, die sich auf dem SrTiO₃-Streifen befindet, formen jetzt wie beabsichtigt den mit SrTiO₃ gefüllten Kapazitätsspalt.

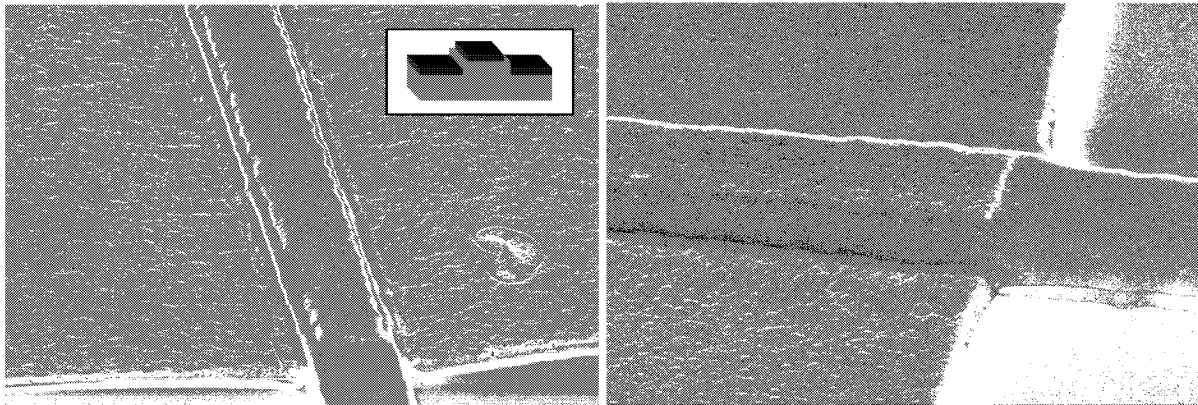


Abb. 75 Rasterelektronenmikroskopaufnahmen einer vertikalen Kapazität nach der Freizätzung der Kapazitätsflanken. Die beiden seitlichen Elektroden sowie die Topelektrode auf dem SrTiO₃-Streifen formen die Kapazitätsgeometrie.

Um den Einfluss der zusätzlich auf dem SrTiO₃-Streifen entstandenen Topelektrode zu bestimmen, wurde diese bei einigen Proben mittels eines Lift-off-Verfahrens wieder entfernt. Dabei wird der für die SrTiO₃-Strukturierung benötigte Fotolack (AZ5210) nach dem Ionenstrahlätzen des SrTiO₃-Streifens nicht entfernt, sondern für die Deposition des kalt gesputterten Elektrodenmaterials (in diesem Falle Kupfer oder Gold) auf dem SrTiO₃-Streifen

belassen. Erst nach der Deposition der Metallisierungsschicht und der Strukturierung der Elektroden werden die Proben in einem Ultraschallbad mittels Aceton gereinigt, wobei sich die Topelektroden mitsamt des darunter befindlichen Photolacks vom SrTiO_3 ablösen. Eine Rasterelektronenmikroskopaufnahme einer solchen vertikalen Kapazität nach dem Lift-off der Topelektrode ist in Abb. 76 (b) zu sehen. Die verbleibende Struktur ähnelt jetzt wieder der bekannten planaren Kapazitätsstruktur (siehe Kapitel 3.3.6), das SrTiO_3 befindet sich jedoch im Kapazitätsspalt und nicht unter den Elektroden.

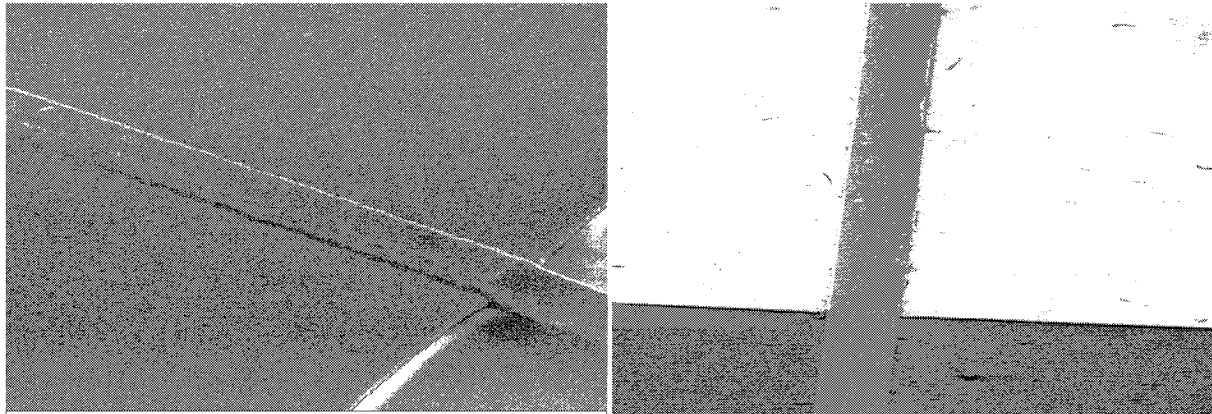


Abb. 76 Rasterelektronenmikroskopaufnahmen einer vertikalen Kapazität in der Übersicht (links) und einer vertikalen Kapazität nach dem Lift-off der Topelektrode (rechts).

4.3.2 Charakterisierung vertikaler Kapazitäten

Temperaturabhängige Messungen der Kapazität C sowie des Verlustes $\tan\delta$ einer planaren, einer vertikalen sowie einer vertikalen Lift-off-Kapazität, die auf demselben SrTiO_3 -Film (Probe #8) basieren und dieselbe nominelle Spaltbreite von $s = 2\mu\text{m}$ besitzen, zeigen gravierende Unterschiede (siehe Abb. 77). Die Kapazität der vertikalen Kapazität ist gegenüber der planaren Standardkapazität im gesamten Temperaturbereich um etwa 20% bis 30% erhöht. Die Verluste $\tan\delta$ sind bei Raumtemperatur nahezu gleich, steigen jedoch im Falle der planaren Kapazität viel stärker an als im Falle der vertikalen Kapazität. So besitzt z. B. die vertikale Kapazität bei einer anwendungsrelevanten Temperatur von $T = 77\text{K}$ einen Verlust von $\tan\delta(T = 77\text{K}) \approx 0.005$, während die planare Kapazität bei derselben Temperatur einen Verlust von $\tan\delta(T = 77\text{K}) \approx 0.009$ aufweist.

Die Kapazität von vertikaler Kapazität mit bzw. ohne Topelektrode unterscheidet sich konstant um etwa $C_{\text{top}} \approx 0.11\text{pF}$. Dies ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass durch die Topelektrode ein nicht unerheblicher zusätzlicher Kapazitätsbeitrag geleistet wird. Dieser Beitrag entspricht den Kapazitäten zwischen Topelektrode und den beiden seitlichen Elektroden. Die Verluste der vertikalen Kapazität nach dem Lift-off liegen bei Raumtemperatur zunächst deutlich unter denen der vertikalen Kapazität, steigen dann jedoch ähnlich wie die Verluste der planaren Kapazität mit abnehmender Temperatur an. Die vergleichsweise höheren Verluste der vertikalen Kapazität mit Topelektrode resultieren wahrscheinlich aus den Verlusten der zwei zusätzlichen Kapazitäten zwischen Top- und Seitenelektroden. Diese zusätzlichen Verluste zeigen jedoch scheinbar eine geringere Temperaturabhängigkeit, so dass die Verluste bei niedrigen Temperaturen vergleichbar sind.

Es ist jedoch insgesamt augenfällig, dass die Verluste beider Arten von vertikalen Kapazitäten niedriger ausfallen als die der planaren Struktur. Es scheint somit günstiger zu sein, das Ferroelektrikum lediglich im Kapazitätsspalt anzuordnen. Dies kann sowohl ein Hinweis auf eventuell vorhandene Probleme am Interface zwischen Elektroden und Ferroelektrikum als auch durch die ungünstigere Feldverteilung im Falle der planaren Standardstruktur sein.

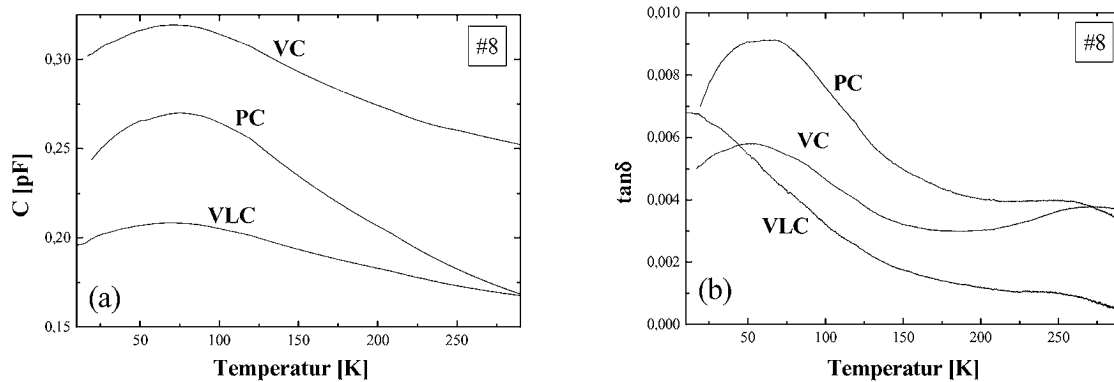


Abb. 77 (a) Kapazität C sowie (b) Verlust $\tan\delta$ einer vertikalen Kapazität (VC) sowie einer vertikalen Lift-off-Kapazität (VLC) als Funktion der Temperatur im Vergleich zu einer planaren Standardkapazität (PC). Die nominelle Spaltbreite beträgt jeweils $s = 2\mu\text{m}$.

Messungen der Abstimmbarkeit demonstrieren ebenfalls die verbesserten Eigenschaften der neu entwickelten Kapazitätsgeometrie. Die Abstimmbarkeit n als Funktion der an die Kapazität angelegten Gleichspannung U_{dc} (siehe Abb. 78 (a)) zeigt im Falle der vertikalen Kapazität (i) ein für Applikationen wünschenswertes, im Gegensatz zur Abstimmbarkeit der planaren Kapazität annähernd lineares Verhalten und (ii) eine im Messbereich gegenüber der planaren Struktur um mehr als 300% erhöhte Abstimmbarkeit bei gleichen Spaltabmessungen von $s = 2\mu\text{m}$. So beträgt die Abstimmbarkeit für eine angelegte Gleichspannung $U_{\text{dc}} = 30\text{V}$ im Falle der vertikalen Kapazität $n(U_{\text{dc}}=30\text{V}) \approx 1.52$ im Vergleich zu $n(U_{\text{dc}}=30\text{V}) \approx 1.17$ für die planare Standardkapazität. Die Abstimmbarkeit der vertikalen Kapazität ohne Topelektrode liegen noch leicht unter denen der planaren Kapazität. Es ist also davon auszugehen, dass ein Großteil der erhöhten Abstimmbarkeit der vertikalen Kapazität durch die zusätzliche Topelektrode erzeugt wird.

Die spannungsabhängigen Verluste $\tan\delta(U_{\text{dc}})$ in Abb. 78 (b) zeigen für die vertikale Kapazität durchgehend niedrigere Verluste als für die planare Kapazität. Zu höheren Gleichspannungen U_{dc} erhöht sich der Abstand zwischen beiden Werten sogar noch. So beträgt der Unterschied zwischen dem Verlust der vertikalen und der planaren Kapazität bei einer angelegten Gleichspannung von $U_{\text{dc}} = 30\text{V}$ mehr als einen Faktor 2.

Die Verluste der vertikalen Kapazität ohne Topelektrode liegen bei einer Spannung von $U_{\text{dc}} = 0\text{V}$ zunächst unter dem durch die vertikale Kapazität hervorgerufenen Verlust. Aufgrund des größeren Abstimmungseffektes in der vertikalen Kapazität unterschreitet der Verlust der vertikalen Kapazität oberhalb einer Spannung von $U_{\text{dc}} \approx 14\text{V}$ die Verlustwerte der vertikalen Lift-off-Kapazität. Generell liegen jedoch die Verluste beider vertikalen Kapazitäten (mit

bzw. ohne Topelektrode) für alle Spannungen unter den Werten der planaren Kapazität, d. h. auch hier zeigt sich, dass die Beschränkung des SrTiO_3 auf den Spalt von Vorteil ist.

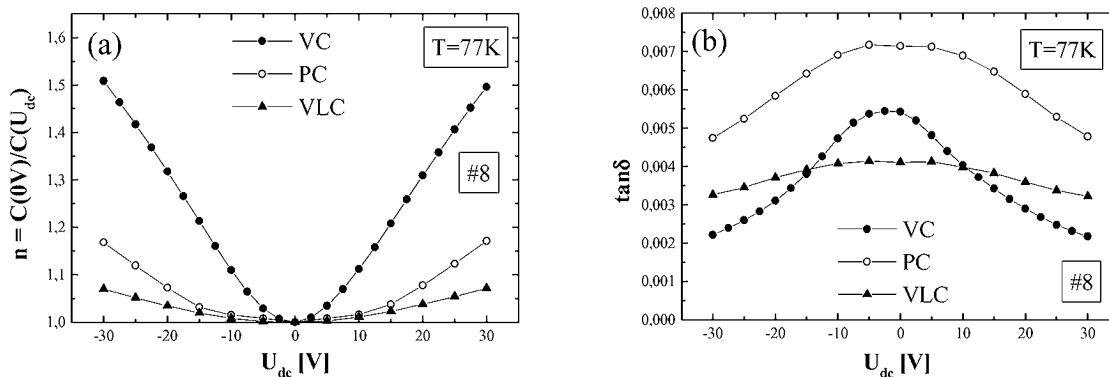


Abb. 78 (a) Abstimmbarkeit n und (b) Verlust $\tan \delta$ einer vertikalen Kapazität mit (VC) und ohne (VLC) Topelektrode und einer planaren Kapazität (PC) bei einer Temperatur von $T = 77\text{K}$. Die nominelle Spaltbreite beträgt jeweils $s = 2\mu\text{m}$.

Abb. 79 zeigt nun einen Vergleich der Abstimmbarkeiten n planarer Kapazitäten und vertikaler Kapazitäten (mit bzw. ohne Topelektrode) jeweils unterschiedlicher Spaltbreite. Die Probertemperatur beträgt jeweils $T = 77\text{K}$. Zur besseren Vergleichbarkeit wurden alle in Abb. 79 dargestellten Kapazitäten aus derselben SrTiO_3 -Schicht hergestellt. Es ist daher davon auszugehen, dass die Unterschiede in ihrer Abstimmbarkeit zum größten Teil auf den Unterschieden in der Kapazitätsgeometrie beruhen.

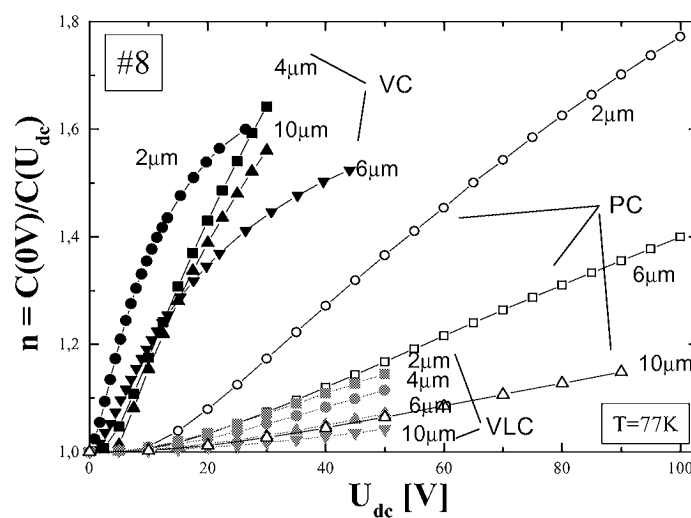


Abb. 79 Vergleich der Abstimmbarkeiten n planarer Kapazitäten (PC) und vertikaler Kapazitäten mit (VC) bzw. ohne Topelektrode (VLC) für unterschiedliche Spaltbreiten $s = 2, 4, 6$ und $10\mu\text{m}$ bei $T = 77\text{K}$ als Funktion der angelegten Gleichspannung U_{dc} .

Die vertikalen Kapazitäten zeigen generell die größten Werte der Abstimmbarkeit n bei gleichen angelegten Gleichspannungen, während die Abstimmbarkeiten der vertikalen Kapazitäten ohne Topelektrode gegenüber den Werten der planaren Kapazitäten reduziert sind.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich ein Großteil der verbesserten Eigenschaften der vertikalen Kapazitätsgeometrie gegenüber der planaren der Konzentration des SrTiO_3 in den Kapazitätsspalt zuzuschreiben ist. Dadurch wurden Probleme am Interface zwischen Topelektrode und SrTiO_3 vermieden und gegebenenfalls eine verbesserte Verteilung des elektrischen Feldes erzielt (siehe Reduktion der Verluste). Die Topelektrode andererseits ist wichtig für die Erhöhung der Kapazität und damit auch der Abstimmbarkeit.

4.3.3 Diskussion

Um die experimentell bestimmten Kapazitätswerte zu analysieren, kann man die theoretisch erwarteten Kapazitätswerte unterschiedlichen Geometrien gemäß eines hierzu angepassten Modells paralleler Kapazitäten (siehe (Gl. 46) in Kapitel 3.3.6) berechnen [Ott02]. Ausgehend von den Grundformeln:

$$(Gl. 46) \quad C_{PC} = C_{PC,STO} + C_{Saphir} + C_{Luft} ,$$

$$(Gl. 86) \quad C_{VC} = C_{VC,STO} + C_{top} + C_{Saphir} + C_{Luft} ,$$

$$(Gl. 87) \quad C_{VLC} = C_{VC,STO} + C_{Saphir} + C_{Luft}$$

wurden die einzelnen Beiträge entsprechend [Vend97] sowie Kapitel 3.3.6 angenommen:

$$(Gl. 47) \quad C_{Saphir} = \epsilon_0 \cdot \epsilon_{Saphir} \cdot \frac{1}{\pi} \cdot \ln \left(\frac{16 \cdot h_{Saphir}}{\pi \cdot s} \right) \cdot d ,$$

$$(Gl. 48) \quad C_{Luft} = \epsilon_0 \cdot \epsilon_{Luft} \cdot \frac{2}{\pi} \cdot \ln \left(\frac{4 \cdot l}{s} \right) \cdot d ,$$

$$(Gl. 49) \quad C_{STO,PC} = \epsilon_0 \epsilon_{STO} \cdot \frac{\pi}{4 \cdot (\ln 2 + (\pi s / 4 h_{STO}))} \cdot d \text{ und}$$

$$(Gl. 88) \quad C_{STO,VC} = \epsilon_0 \cdot \epsilon_{STO} \cdot \frac{h_{Elektrode} \cdot d}{s}$$

mit den Dielektrizitätskonstanten der jeweiligen Materialien ϵ_{STO} , ϵ_{Saphir} und ϵ_{Luft} , der Spaltbreite s der Kapazität, den Schichtdicken h und H des SrTiO_3 und des Saphirs, der Breite d der Elektroden sowie der Länge l der Kontaktelektroden. Für die Abschätzung des SrTiO_3 -Beitrags im Falle der vertikalen Kapazitätsgeometrien ist dabei auf das Modell des Parallelplattenkondensators zurückgegriffen worden. Der Beitrag der Kapazitäten zwischen der Top- und den Seitenelektroden im Falle der vertikalen Kapazitäten wurde als konstant angenommen und hängt von den Abmessungen und der genauen Strukturierung ab, d. h. in erster Näherung $C_{top} \approx \text{const.}$

Abb. 80 zeigt eine Übersicht der verschiedenen Kapazitätsanordnungen (planare Kapazität und vertikale Kapazitäten mit bzw. ohne Topelektrode) mit den entsprechenden Ersatzschaltbildern zur Berechnung des Wertes der Kapazität.

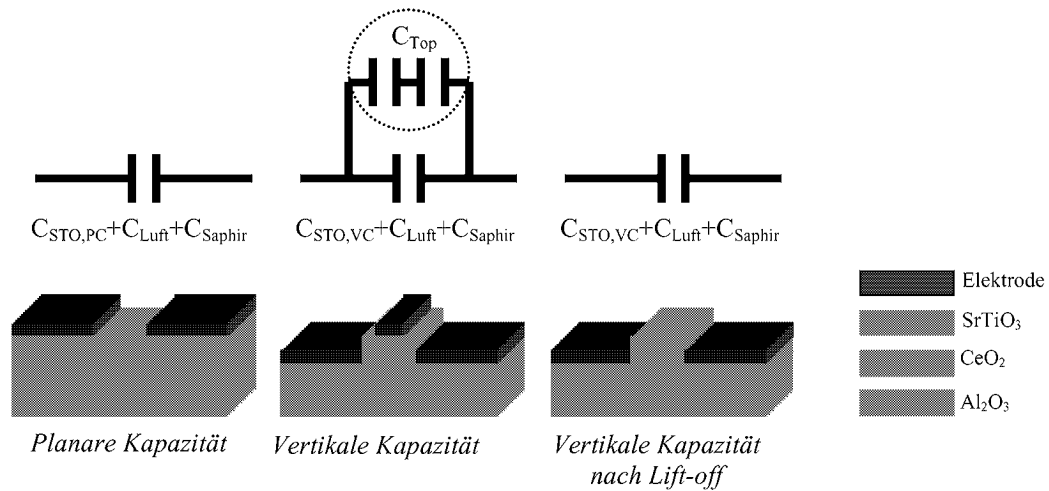


Abb. 80 Skizzen und Ersatzschaltbilder der unterschiedlichen Kapazitätsgeometrien: planare Kapazität (PC), vertikale Kapazität (VC) sowie vertikale Kapazität nach Lift-off der Topelektrode (VLC).

Abb. 81 zeigt nun den Vergleich der gemäß der Gleichungen (Gl. 40) , (Gl. 86) sowie (Gl. 87) theoretisch berechneten und den experimentell gefundenen Werten für planare und vertikale Kapazitäten mit bzw. ohne Topelektrode für die unterschiedlichen Spaltbreiten $s = 2, 4, 6$ und $10\mu\text{m}$. Alle gemessenen Kapazitäten basieren wiederum auf derselben gesputterten SrTiO_3 -Schicht. Zusätzlich wurden planare Kapazitäten auf CeO_2 -gepuffertem Saphir hergestellt, um die Beiträge C_{Luft} und C_{Saphir} separat zu überprüfen. Zur Berechnung wurden Werte der Dielektrizitätskonstanten $\epsilon_{\text{Luft}} = 1$, $\epsilon_{\text{Saphir}} = 9.6$ und $\epsilon_{\text{STO}} = 300$ verwandt. Der Beitrag der Topelektrode im Falle der vertikalen Kapazität ist durch $C_{\text{Top}} \approx 0.14\text{pF}$ abgeschätzt. Generell besteht eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den theoretisch berechneten Werten. Lediglich im Falle der kleinen Spaltabmessung ($s=2\mu\text{m}$) zeigt sich für die planare Geometrie eine Abweichung. Dies ist wiederum ein Hinweis auf die in diesem Fall vorhandene Feldverzerrung, die bereits in Kapitel 4.1.2 diskutiert wurde und auf die nicht mehr erfüllte Bedingung $s \gg h_{\text{STO}}$ zurückgeführt wird. Zur weiteren Überprüfung der Ergebnisse wurden Sonnet-Simulationen durchgeführt. Da diese numerischen Berechnungen lediglich für einfachere Strukturen und insbesondere größere Abmessungen möglich sind, konnten lediglich die Voraussagen für die Referenzkapazitäten ohne SrTiO_3 überprüft werden. Die Ergebnisse dieser Simulationen sind in Abb. 81 mit aufgeführt, sie stimmen sehr gut mit den theoretischen Vorhersagen des Modells paralleler Kapazitäten und somit auch mit den experimentellen Werten überein.

Die hervorragende Übereinstimmung zwischen theoretischer Vorhersage und experimentellen Ergebnissen bestätigt insgesamt sowohl die Anwendbarkeit des Modells paralleler Kapazitäten auf die im Rahmen dieser Arbeit benutzten SrTiO_3 -Dünnschichtkapazitäten als auch die sinnvolle Abschätzung der Geometrie des Parallelplattenkondensators für den

Beitrag von $C_{\text{STO,VC}}$ im Falle der vertikalen Kapazitäten sowie der vertikalen Lift-off-Kapazitäten. Dieses relativ einfache Modell lässt sich somit ideal für die Optimierung dieser Bauelemente benutzen. Im Gegensatz zu Simulationen ist es des weiteren in der Lage, relativ komplexe und kleine Strukturen zu bewerten.

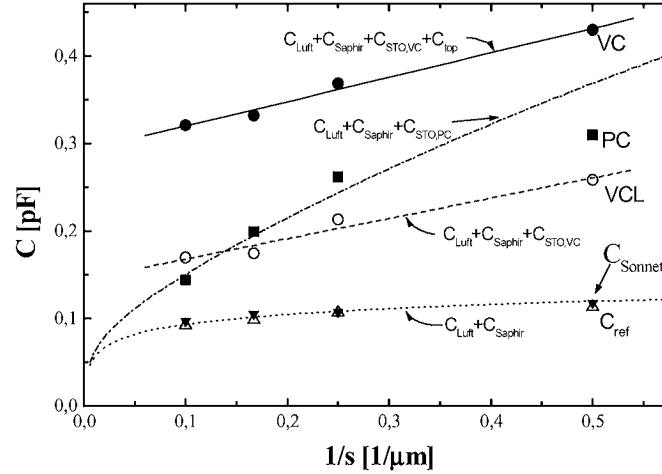


Abb. 81 Theoretisch berechnete (Linien) sowie experimentell gemessene (Probe #8) (Punkte) des Kapazitätswerts unterschiedlicher Varaktorgeometrien (planare Kapazitäten (PC), vertikale Kapazitäten mit (VC) bzw. ohne Topelektrode (VCL)) als Funktion der inversen Spaltbreite $1/s$. Zur separaten Überprüfung der Beiträge C_{Luft} und C_{Saphir} sind zusätzlich die experimentellen, berechneten sowie mit Hilfe von Sonnet simulierte Werte (geschlossene Dreiecke) der auf CeO_2 -gepuffertem Saphir strukturierte planare Kapazitäten (C_{ref}) verschiedener Spaltbreite im Diagramm enthalten.

Eine abschließende Bewertung der unterschiedlichen Varaktorgeometrien geschieht wiederum mittels des Qualitätsfaktors K:

$$(Gl.29) \quad K(U_{dc}) = \sqrt{\frac{(n(U_{dc}) - 1)^2}{n(U_{dc}) \cdot \tan \delta(0V) \cdot \tan \delta(U_{dc})}}.$$

Abb. 82 zeigt den Vergleich der Qualitätsfaktoren K der unterschiedlichen Designs als Funktion der angelegten Gleichspannung U_{dc} . Zum besseren Vergleich sind neben den Werten für die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten planaren und vertikalen Kapazitäten auch mehrere Werte für planare Kapazitäten aus der Literatur in den Graphen aufgenommen [Bouz02] [Vend99] [Kozy98]. Dabei zeigt sich:

- Die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten SrTiO_3 -Filme weisen im Hinblick auf die Anwendbarkeit in Hochfrequenz-Bauelementen hinreichend gute Eigenschaften auf (die beste planare Kapazität erfüllt das Kriterium $K(U_{dc}) > 50$ bei einer angelegten Gleichspannung von $U_{dc} \approx 44\text{V}$). Berücksichtigen wir, dass Probe #8 mit einem $\epsilon_{\text{STO}}(T=77\text{K}) = 300$ noch eine vergleichbar kleine dielektrische Konstante hat (ϵ -Werte von bis zu 570 wurden für unsere

Proben bei 77K gemessen) und damit eine kleine Abstimmbarkeit aufweist, erscheinen sogar wesentlich höhere K-Werte möglich.

- Die neu entwickelte vertikale Kapazitätsgeometrie bietet eine deutliche Verbesserung der für die Applikation entscheidenden Parameter (die beste vertikale Kapazität erfüllt das Kriterium $K(U_{dc}) > 50V$ bereits bei einer angelegten Gleichspannung von $U_{dc} \approx 18V$).
- Die Möglichkeit der Kombination mit dem Hochtemperatursupraleiter $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ist durch die Begrenzung des $SrTiO_3$ auf den Kapazitätsspalt deutlich verbessert.

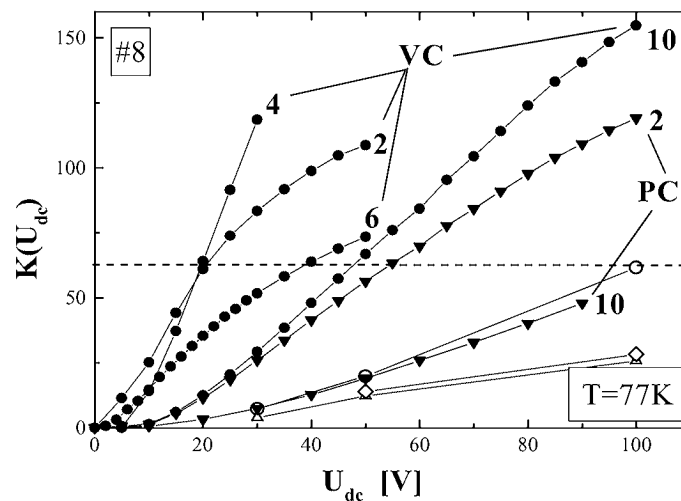


Abb. 82 Qualitätsfaktor K der unterschiedlichen Kapazitätsgeometrien: (i) planare Kapazität (PC, geschlossene Dreiecke), (ii) vertikale Kapazität (VC, geschlossene Kreise) sowie (iii) verschiedene Werte für planare Kapazitäten aus der Literatur (offene Symbole) [Bouz02] [Vend99] [Kozy98].

Es konnte in diesem Kapitel also gezeigt werden,

- dass die verlustbehafteten sowie abstimmbaren Eigenschaften von Kapazitätsstrukturen für den Einsatz in Hochfrequenzbauelementen durch intelligente neue Designs wie das der vertikalen Kapazität entscheidend verbessert werden können,
- dass die neu entwickelte Geometrie der vertikalen Kapazität durch geschickte Strukturierung realisiert werden kann
- und dass die Eigenschaften sowohl planarer wie auch vertikaler Kapazitätsgeometrien mit Modellen paralleler Kapazitäten berechnet werden können.

5 Zusammenfassung

Im Fokus dieser Arbeit standen die Untersuchung und das Verständnis der linearen und nichtlinearen dielektrischen Hochfrequenzeigenschaften dünner ferroelektrischer SrTiO₃-Schichten auf Saphir. Dieses System eignet sich aufgrund seiner ausgeprägten Abhängigkeit der Dielektrizitätskonstante vom angelegten elektrischen dc-Feld als ein ideales Abstimmelement für die Anwendung in frequenzagilen Hochfrequenzbauelementen. Im einzelnen konzentrierten sich die Arbeiten auf folgende Schwerpunkte:

- (i) Herstellung und systematische Untersuchung der Zusammenhänge zwischen den unterschiedlichen Materialeigenschaften, insbesondere den strukturellen und dielektrischen Eigenschaften, mit dem Ziel eines grundlegenden Verständnisses der diesen Eigenschaften zugrunde liegenden Mechanismen.
- (ii) Untersuchung der nichtlinearen Mikrowelleneigenschaften der SrTiO₃-Schichten. Die in diesem Bereich interessanten Eigenschaften, wie z. B. die Intermodulationsstörungen, sind bisher weitestgehend nicht untersucht worden, spielen aber besonders in der Beurteilung der SrTiO₃-Schichten hinsichtlich ihrer Integrierbarkeit in Bauelementen für hohe hf-Leistungen eine wichtige Rolle.
- (iii) Integration der SrTiO-Schichten in hf-Teststrukturen. Dabei sollten besonders die möglichen Probleme einer Integration aufgezeigt werden und am Beispiel abstimmbarer Kapazitäten für abstimmbare hf-Filter demonstriert werden, dass (a) kleinste SrTiO₃-Strukturen erstellt und integriert werden können und (b) das Design der Teststruktur einen entscheidenden Einfluss auf die Eigenschaften und Qualität des Bauelementes hat. Hierbei soll insbesondere auch die langfristige Perspektive einer Integration in hochtemperatursupraleitende Bauelemente beachtet werden, die sich durch extrem niedrige Mikrowellenverluste auszeichnen.

Zu diesen Aufgabenstellungen wurden im Einzelnen folgende Ergebnisse erzielt:

- (i) Sowohl die strukturellen als auch die dielektrischen Eigenschaften der mittels Magnetronsputtertechnik bei unterschiedlichen Bedingungen auf CeO₂-gepuffertem Saphir abgeschiedenen SrTiO₃-Schichten zeigen eine starke Abhängigkeit von den Depositionsparametern. Insbesondere die Heizertemperatur T_H während des SrTiO-Depositionsprozesses besitzt einen großen Einfluß auf die strukturellen und dielektrischen Eigenschaften der Filme. Es lassen sich zwei unterschiedliche Temperaturbereiche definieren:
 - (a) Im Temperaturbereich $650^\circ\text{C} < T_H < 830^\circ\text{C}$ wächst der epitaktische Anteil der SrTiO₃-Filme (110)-orientiert auf. Die relative Gitterverspannung ist nahezu konstant und mit einem Wert von $(\Delta a/a) \approx 1.7\%$ relativ groß. Die Dielektrizitätskonstante ($120 < \epsilon_{\text{max}} < 250$), hf-Verluste ($0.005 < \tan\delta_{\text{max}} < 0.01$) und die Abstimmbarkeit ($1.15 < n_{\text{STO},U=100\text{V},T=77\text{K}} < 1.3$) sind sehr gering.
 - (b) Im Temperaturbereich von $830^\circ\text{C} < T_H < 880^\circ\text{C}$ hingegen bildet sich in den SrTiO₃-Schichten neben der (110)-Phase noch zusätzlich ein (111)-Phasenanteil.

Dieser führt zu einer deutlichen Relaxation der Schichten. Die relative Gitterverspannung in diesem Bereich beträgt konstant $(\Delta a/a) \approx 0.6\%$ und ist damit gegenüber den rein (110)-orientiert aufgewachsenen Schichten um mehr als 60% reduziert. Die Spannungsreduktion wirkt positiv auf die dielektrischen Eigenschaften, die Dielektrizitätskonstante ($350 < \epsilon_{\max} < 550$), die Abstimmbarkeit ($1.85 < n_{\text{STO}, U=100\text{V}, T=77\text{K}} < 2.05$), allerdings auch die hf-Verluste ($0.014 < \tan\delta_{\max} < 0.018$) steigen stark an.

Insgesamt ergibt sich eine deutliche Korrelation aller dielektrischen Eigenschaften mit der Gitterverspannung. Diese Korrelation kann konsistent durch ein theoretisches Modell auf der Basis der freien Energie des Ferroelektrikums unter Berücksichtigung der Gitterverspannung [Pert98] beschrieben werden. Es zeigt sich, dass die größten Werte für den Qualitätsfaktor K_{STO} für SrTiO_3 -Schichten geringer Gitterverspannungen gefunden werden. Eine möglichst geringe Verspannung der Schichten ist daher für Anwendungen vorteilhaft. Dies kann durch geeignete Wahl des Substrates oder der Pufferschicht oder durch Optimierung der Präparationsparameter erreicht werden.

- (ii) Die Messungen der Intermodulationssignale in den SrTiO_3 -Schichten weisen auf eine vorzügliche Leistungsverträglichkeit der Filme hin. Auftretende Intermodulationen werden typischerweise erst ab einer eingestrahnten Mikrowellenleistung von $P_1 > 0\text{dBm}$ detektiert. Allerdings zeigen die IMD-Signale (a) eine sehr ungewöhnliche Leistungsabhängigkeit und (b) treten IMD-Signale P_i mit $i = 3, 5, 7, 9$, d.h. auch höherer Ordnung auf. Alle IMD-Signale zeigen bei leistungsabhängigen Messungen zuerst einen stark temperatur- und dc-spannungsabhängigen Anstieg mit Steigung $n_1 \approx 2$, gefolgt von einer Abnahme des IMD-Signals und schließlich einen zweiten, nahezu temperatur- und dc-spannungsunabhängigen Anstieg mit Steigung $n_2 \approx 3$. Experimentell konnte nachgewiesen werden, dass der erste Anstieg durch die nichtlineare Dielektrizitätskonstante verursacht wird, während der zweite Anstieg auf einer bei sehr hohen hf-Leistungen einsetzenden Leitfähigkeit beruht. Die ungewöhnliche erste Steigung $n_1 \approx 2$ scheint hierbei ein Artefakt der Messung zu sein und beruht wahrscheinlich auf der nicht ausreichenden Messauflösung von -60dBm . Detaillierte Untersuchungen der Korrelation zwischen den Spannungsabhängigkeiten des IMD-Signals und des nichtlinearen Anteils der Dielektrizitätskonstante hingegen bestätigen die zu erwartende theoretische Abhängigkeit $P_i \propto \epsilon^i$ experimentell.
- (iii) Schließlich wurde der Einfluss der geometrischen Anordnung des Ferroelektrikums in einem Hochfrequenzbauelement untersucht. Unterschiedliche Varaktordesigns wurden theoretisch und experimentell analysiert. Es zeigte sich, dass mittels eines in dieser Arbeit weiterentwickelten Modells für die Beschreibung von komplexen Kapazitäten die kapazitiven Eigenschaften von planaren Varaktoren bis ca. $4\mu\text{m}$ gut beschrieben werden können. Anhand dieser

Analysen wurde im Rahmen dieser Arbeit eine verbesserte Varaktorgeometrie für die Integration in abstimmbare Hochfrequenzbauelemente entwickelt. Diese zeigt gegenüber dem planaren Standarddesign eine um ca. 300% verbesserte Abstimmbarkeit und um ca. 50% reduzierte Verluste. Schon für extrem kleine Steuerspannungen von $U_{dc} < 20V$ bietet der Qualitätsfaktor dieser Geometrie für die Anwendung ausreichend hohe Werte. Die Erhöhung der Abstimmbarkeit wird dabei auf die Verwendung einer Topelektrode zurückgeführt, die Verringerung der Verluste (a) auf eine Restriktion des verlustbehafteten Ferroelektrikums auf den Kapazitätsspalt und (b) auf eine auf die optimierte Geometrie zurückzuführende günstigere Feldverteilung.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass im Rahmen dieser Arbeit deutliche Zusammenhänge zwischen strukturellen und dielektrischen (lineare und nichtlinear) Mikrowelleneigenschaften nachgewiesen werden konnten. Dabei scheint die Verspannung des $SrTiO_3$ -Kristallgitters ein entscheidender Basisparameter zu sein. Interessant für künftige Arbeiten wäre hier sicher die Herstellung von dünnen $SrTiO_3$ -Schichten auf anderen Substratmaterialien, Pufferschichten oder Pufferschichtsystemen, die eine geringere Gitterfehlانpassung bei gleichbleibend geringen Verlustbeiträgen ermöglichen könnten. Hierzu wurden erste erfolgversprechende Tests mit CeO_2 -Zusatzschichten durchgeführt, die eine Entspannung der Schicht und eine Reduktion der Verluste bewirkten. Die Messungen der Intermodulationsstörungen zeigten einerseits eine wahrscheinlich für die meisten potentiellen Anwendungen ausreichend gute Leistungsverträglichkeit der hergestellten $SrTiO_3$ -Schichten. Ausserdem könnten die IMD-Messungen andererseits ein ideales Werkzeug zum besseren Verständnis der mikroskopischen Mechanismen der Ferroelektrizität im $SrTiO_3$ bieten. So zeigten die hier vorgestellten Messungen u.a., dass ab bestimmten hf-Leistungen Ladungsträger erzeugt werden, die zu Leitfähigkeit und damit zu Verlusten führen. Die im Rahmen der Arbeit verwandten und zum Teil hier entwickelten Kapazitätsdesigns und das hierzu weiterentwickelte Modell zur Beschreibung der komplexen Kapazitäten bieten eine Möglichkeit, neben den präparativen Bedingungen auch die geometrischen Aspekte dieser hf-Bauelemente besser zu verstehen und zu optimieren. Die Verbesserungen, die durch das hier vorgestellte Design der vertikalen Kapazität erfolgten, sind hierfür ein Beispiel. Eine erfolgreiche Integration der hier untersuchten Materialien in abstimmbaren Mikrowellenbauelementen kann gegebenenfalls auf einige der hier erarbeiteten Erkenntnisse zurückgreifen; insbesondere die notwendige Minimierung der Schichtverspannung und die Optimierung der Bauelementanordnung. Diese Erkenntnisse lassen sich wahrscheinlich auch auf andere perowskitische Ferroelektrika übertragen.

Literaturverzeichnis

- [Bouz02] K. Bouzehouane, P. Woodall, B. Marcilhac, A. N. Khodan, D. Crete, E. Jacquet, J. C. Mage, J. P. Contour, Applied Physics Letters Vol. **80**, No. 1, 109 (2002)
- [Damj98] D. Damjanovic, Ferroelectric, dielectric and piezoelectric properties of ferroelectric thin films and ceramics, Rep. Prog. Phys. 61, 1302 (1998)
- [Damj98b] D. Damjanovic, Ferroelectric, dielectric and piezoelectric properties of ferroelectric thin films and ceramics, Rep. Prog. Phys. 61, 1295 (1998)
- [Find96] A. T. Findikoglu, Q. X. Jia, X. D. Wu, G. J. Chen, T. Ventaketasan, D. W. Reagor, Appl. Phys. Letters **68**, 1651 (1996)
- [Fuch99] D. Fuchs, C. W. Schneider, R. Schneider, H. Rietschel, Journal of Applied Physics Vol. **85**, No, 10, 7362 (1999)
- [Galt93] D. Galt, J. C. Price, J. A. Beall, R. H. Ono, Applied Physics Letters **63**, 3078 (1993)
- [Ginz46] V. Ginzburg, J. Phys. USSR 10, 107 (1946)
- [Hein99] M. Hein, High-Temperature-Superconductor Thin Films at Microwave Frequencies, Springer-Verlag (1999)
- [Hipp44] A. von Hippel et al., RPTPB 4660 (1944)
- [Holl94] E. Hollmann, O.G. Vendik, A.G. Zaitsev, B.T. Melekh, Supercond. Sci. Technol.7, 609 (1994)
- [IFF95] D. Richter, Einführung in die Ferroelektrizität, IFF-Ferienschule, FZ Jülich (1995)
- [Insp03] Recherche in der Internetdatenbank „Inspec“
- [Jack45] W. Jackson, W. Reddish, Nature 156, 717 (1945)
- [Jack83] J. D. Jackson, Klassische Elektrodynamik, Walter de Gruyter, Berlin (1983)
- [Kozy01] A. B. Kozyrev, M. M. Gaidukov, A.G. Gagarin, A. V. Tumarkin, S. V. Razumov, Technical Physics Letters, Vol. **28**, No. 3, 239 (2001)
- [Kozy98] A. B. Kozyrev et al., Journal of Applied Physics Vol. **84**, 3326 (1998)
- [Krup99] J. Krupka, K. Derzakowski, M. Tobar, J. Harnett, R. G. Geyer, Meas. Sci. Technol. **10**, 397 (1999)
- [Lahl01] P. Lahl, R. Wördenweber, M. Hein Applied Physics Letters Vol. **79**, 512 (2001)

-
- [Lahl01b] P. Lahl, Dissertation, Universität Köln (2001)
- [Lipp99] M. Lippma, N. Nakagawa, M. Kawasaki, S. Odashi, Y. Inaguma, M. Itoh, H. Koinuma, Applied Physics Letters Vol. **74**, No. 23, 3543 (1999)
- [Mega45] H. Megaw, Nature 155, 484 (1945)
- [Miya45] S. Miyake, R. Ueda, J. Phys. Soc. Japan 1, 32 (1945)
- [Müll79] K. A. Müller, H. Burkard, Phys. Rev. B **19**, 3593 (1979)
- [Ott00] R. Ott, Diplomarbeit, RWTH Aachen, 2000
- [Ott02] R. Ott, R. Wördenweber, Applied Physics Letters, Vol. **80**, No. 12, 2150 (2002)
- [Pert98] N. A. Pertsev, A. G. Zembilgotov, A. K. Tanagtsev, Physical Review Letters, Vol. **80**, No. 9, 1988 (1998)
- [Pies87] W. Pies, A. Weiss: Landolt-Börnstein: Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik, III, 7 (1987)
- [Prud97] A. M. Prudan, E. K. Gol'man, A. B. Kozyrev, V. E. Loginov, R. N. Kyutt, Phys. Solid State **39** (6), 920 (1997)
- [Prud98] A. M. Prudan, E. K. Gol'man, A. B. Kozyrev, A. A. Kozlov, V. E. Loginov, A. V. Zemtsov, Physics of the Solid State, Vol. **40**, No. 8, 1339 (1998)
- [Rook45] H. P. Rooksby, Nature 155, 484 (1945)
- [Sonn96] Sonnet Software, Inc., Liverpool, NY 13088 (1996)
- [Vaup98] M. Vaupel, Dissertationsarbeit, Universität Köln (1998)
- [Vend00] O. G. Vendik, L. T. Ter-Martirosyan, Journal of Applied Physics, Vol. **87**, No. 3, 1435 (2000)
- [Vend01] O. G. Vendik, M. A. Nikol'skii, Technical Physics, Vol. **46**, No. 1, 117 (2001)
- [Vend97] O. G. Vendik, A. B. Kozyrev, T. B. Samoilova, E. K. Hollmann, G. Ockenfuß, R. Wördenweber, A. G. Zaitsev, J. Supercond. Vol. **10**, 63 (1997)
- [Vend99] O.G. Vendik, S.P. Zubko, M.A. Nikol'skii, Technical Physics Vol. **44**, 349 (1999)
- [Vend99b] O. G. Vendik, E. K. Hollmann, A. B. Kozyrev, A. M. Prudan, Journal of Superconductivity, Vol. **12**, No. 2 (1999)
- [Vul45] B. M. Vul, Nature 156 (1945)
- [Vul45b] B. M. Vul, I. M. Goldmann, C. R. Acad. Sci. USSR 46, 139 (1945)
- [Wang93] F. Wang, R. Wördenweber, Thin Solid Films **227**, 200 (1993)
- [Wase03] R. Waser, Nanoelectronics and Information Technology, 65, Wiley-VCH Verlag, 2003

-
- [Wörd91] R. Wördenweber, Supraleitende Schichten, Dünnschichttechnologie, VDI-Verlag (1991)
- [Zafa98] S. Zafar, R. E. Jones, B. Jiang, B. White, P. Chu, D. Taylor, S. Gillespie, Appl. Phys. Lett. 73, 175 (1998)
- [Zait98] A. G. Zaitsev, R. Kutzner, R. Wördenweber, T. Kaiser, M. A. Hein, G. Müller, J. Supercond. **11**, 361 (1998)
- [Zemb02] A. G. Zembilgotov, N. A. Pertsev, H. Kohlstedt, R. Waser, Journal of Applied Physics, Vol. **91**, No. 4, 2247 (2002)
- [Zucc97] C. Zuccaro, Dissertationsarbeit, RWTH Aachen (1997)

Teilpublikationen

R. Ott, R. Wördenweber

"Improved Designs of tunable ferroelectric capacities for microwave applications"

Applied Physics Letters Vol. **80** No. 12, 2150 (2002)

R. Ott, R. Wördenweber

"A new design of tunable ferroelectric capacitors in RF applications"

Physica C: Superconductivity Vol. **372-376**, Part 1, 540 (2002)

R. Ott, P. Lahl, R. Wördenweber

"Nonlinear microwave properties of ferroelectric thin films"

to be published

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Schicht- und Ionentechnik (ISG-2) des Forschungszentrums Jülich GmbH angefertigt.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. R. Wördenweber sowohl für die Übernahme des Referats als auch die faszinierende Aufgabenstellung und optimale Betreuung bei ihrer Lösung.

Für die Übernahme des Koreferats danke ich Herrn Prof. Dr. H. Micklitz.

Herrn Prof. A. Offenhäuser sowie Herrn Dr. N. Klein möchte ich für die Möglichkeit danken, diese Arbeit am Institut für Schichten und Grenzflächen (ISG-2) in der Abteilung Supraleitung und hf-Sensoren durchführen zu können. Weiterhin danke ich Herrn Dr. N. Klein für viele anregende Diskussionen und Erläuterungen auf dem Gebiet der hf-Bauelemente.

Herrn Dr. P. Lahl danke ich für die zahllosen Hilfestellungen, Diskussionen und Anregungen im Laufe dieser Arbeit, besonders auf dem Gebiet der hf-Messtechnik.

Bei Herrn Dr. P. Selders bedanke ich mich für seine große Unterstützung vor allem im Bereich der Schichtherstellung und der Strukturierung.

Bei Herrn Dr. E. Hollmann bedanke ich mich für eine Reihe wertvoller Diskussionen und Hilfestellungen bei der Analyse der SrTiO_3 -Schichten.

Bei Frau S. Bunte möchte ich mich für ihre unermüdliche Hilfe bei der Prozessierung der Proben bedanken.

Herrn G. Pickartz danke ich für die Herstellung der Goldschichten.

Herrn Dr. M. Vaupel danke ich für die Einweisung in die Sputteranlage „Nordiko“ und in die Methoden der Röntgendiffraktometrie.

Herrn R. Kutzner danke ich für die Unterstützung und Hilfe in technischen Fragen.

Allen ehemaligen und derzeitigen Mitarbeitern der Arbeitsgruppe von Herrn Wördenweber danke ich für das gute Arbeitsklima, zahllose kurzweilige Gespräche und eine ausnahmslos hervorragende Unterstützung.

Weiterhin danke ich

dem gesamten Reinraumteam um Herrn J. Müller für die Betreuung und Hilfestellungen im Reinraum,

Herrn H.-P. Bochem für zahlreiche REM-Aufnahmen,

Frau M. Nonn für die Herstellung der Cr-Masken,

Herrn N. Wolters für die Anfertigung verschiedener Chipcarrier,

den Herren W. Klein, H. M. Schwan, D. Strobl sowie R. Otto stellvertretend für die Mitarbeiter der Werkstätten für die Herstellung vieler mechanischer bzw. elektrischer Teile sowie allen anderen Mitarbeitern des Institutes für ihre Unterstützung und das angenehme Arbeitsklima.

Bei Frau S. Ott bedanke ich mich für die intensive sprachliche Korrektur dieser Arbeit.

Nicht zuletzt möchte ich natürlich ganz besonders meinen Eltern danken, ohne deren Unterstützung in jeder erdenklichen Hinsicht mein gesamtes Studium der Physik unmöglich gewesen wäre.

Forschungszentrum Jülich
in der Helmholtz-Gemeinschaft



Jül-4098
November 2003
ISSN 0944-2952