

CARACTERISATIONS DIELECTRIQUES DE FILMS MINCES D'YBaCuO SEMICONDUCTEUR EN VUE DE L'OPTIMISATION DE BOLOMETRES POUR L'IMAGERIE THZ

*Aurélie GENSBITTEL¹, Alireza BANISADR¹, Olivier DUBRUNFAUT¹, Jean-Claude BADOT²,
Alain KREISLER¹, Annick DEGARDIN¹*

¹*SUPELEC / LGEP ; CNRS / UMR 8507 ; UPMC Univ Paris 06 ; Univ Paris-Sud 11
Laboratoire de génie électrique de Paris, 11 rue Joliot Curie, 91192 GIF SUR YVETTE Cedex
aurelie.gensbittel@supelec.fr*

²*Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris (CNRS-UMR 7574)
Chimie-ParisTech, 11 rue P. et M. Curie - 75231 Paris Cedex 05, France*

1. INTRODUCTION

Les propriétés du matériau $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) varient avec le taux d'oxygène qui le compose : il est supraconducteur pour $\delta < 0,5$ et devient semi-conducteur pour de plus faibles concentrations en oxygène ($0,6 < \delta \leq 1$). Dans la phase semi-conductrice, YBCO présente un taux de variation de la résistance en fonction de la température (TCR : *thermal coefficient of resistance* calculé selon $(1/R)(dR/dT)$) de l'ordre de 3 à 4 %·K⁻¹ [1]. Cette valeur de TCR est plus élevée que celle de matériaux semi-conducteurs utilisés couramment pour la détection infrarouge tels que le VO_x (2%·K⁻¹) [2] et le SiH amorphe (2,5 %·K⁻¹) [3]. De plus, ce matériau peut être déposé à basse température sur différents substrats et notamment sur silicium. Ceci permet d'envisager l'intégration d'un détecteur thermique à base d'YBCO à un circuit électronique de lecture réalisé sur un *wafer* de silicium, en technologie CMOS par exemple [4].

Cela fait d'YBCO semi-conducteur un candidat idéal pour le développement de bolomètres dans la région de l'infrarouge et des ondes THz (de 500 GHz à 5 THz) [5]. Ces détecteurs thermiques sont étudiés, dans cette gamme de fréquences, pour des applications d'imagerie biomédicale, de sécurité civile ou encore de contrôle qualité en milieu industriel. Notre équipe a développé un premier démonstrateur d'imager THz composé d'une matrice 2×2 de bolomètres en YBCO semi-conducteur. Afin d'optimiser la géométrie du système et d'augmenter la sensibilité, une meilleure connaissance des caractéristiques diélectriques et thermiques du matériau est nécessaire.

Nous avons procédé à des caractérisations diélectriques de films minces d'YBCO semi-conducteur dans la gamme de fréquences 4 Hz – 2 GHz à l'aide d'une technique de discontinuité coaxiale. Des mesures du même type en fonction de la température sont prévues pour compléter les premières conclusions.

2. PROCEDURES EXPERIMENTALES

Les caractérisations diélectriques s'effectuent à l'aide de cellules en technologie coaxiale dans lesquelles on insère le matériau à mesurer. Les cellules, connectées en bout de câble coaxial, sont caractérisées par différents analyseurs de réseaux entre 40 Hz et 40 GHz. Le principe est de relier les paramètres S de la discontinuité créée par la cellule contenant le matériau aux paramètres constitutifs de celui-ci [6]. Un schéma de cette cellule est représenté sur la figure 1. Dans le cas des couches minces, la caractérisation des cellules n'est possible que jusqu'à une fréquence de l'ordre de quelques GHz. En effet, lorsque l'épaisseur du film est plus faible que 1 μm, des résonances parasites apparaissent et le modèle de calcul utilisé n'est plus valable. Dans notre cas, nous avons caractérisé les cellules jusqu'à 2 GHz.

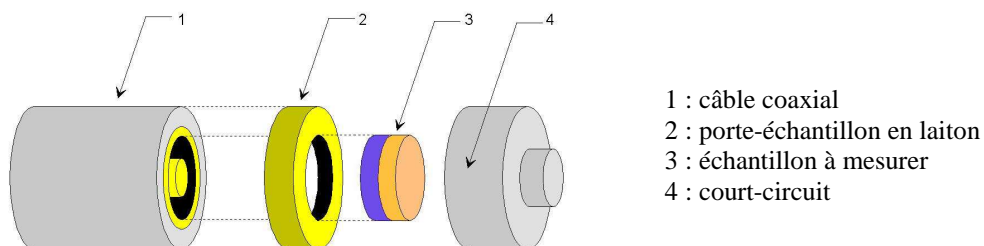


Figure 1 : schéma de la cellule coaxiale utilisée pour la caractérisation diélectrique des films d'YBCO

A partir des paramètres S_{ij} mesurés, les valeurs des permittivités diélectriques relatives, réelle ϵ' et complexe ϵ'' , sont calculées.

Les couches minces d'YBCO sont déposées par pulvérisation cathodique DC magnétron off-axis. Le dépôt est réalisé à température de 100°C sous atmosphère d'argon et d'oxygène [1]. Nous avons effectué des dépôts de 500 nm et 800 nm d'épaisseur.

Pour notre étude, le dépôt a été réalisé sur des substrats monocristallins de MgO. Nous avons utilisé des substrats ayant une forme circulaire adaptée aux cellules coaxiales, d'un diamètre de 7mm et d'une épaisseur de 500µm. A la suite du dépôt du matériau, un disque en or de 1 mm de diamètre et de 400 nm d'épaisseur a été déposé par évaporation au centre des échantillons afin d'assurer le contact avec l'âme centrale des connecteurs coaxiaux.

3. RESULTATS

Nous avons comparé les valeurs des permittivités diélectriques ϵ' et ϵ'' des films d'YBCO de 500 et 800 nm d'épaisseur. Nous n'avons pas noté d'influence notable de l'épaisseur de la couche mince. Nous présentons ici les résultats d'un film de 800 nm d'épaisseur.

La figure 2 représente l'évolution en fonction de la fréquence des permittivités réelle et imaginaire ϵ' et ϵ'' . Les valeurs obtenues sont élevées. À partir de ces paramètres, la conductivité du film σ peut être calculée selon la formule :

$$\sigma = \epsilon'' \omega , \tag{équation-1}$$

où $\omega = 2\pi f$ est la pulsation et f la fréquence. La figure 3 représente la conductivité du film d'YBCO en fonction de la fréquence.

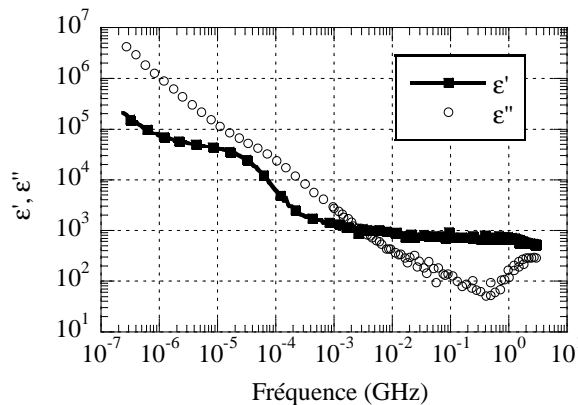


Figure 2 : Permittivités diélectriques relatives réelle et imaginaire ϵ' et ϵ'' en fonction de la fréquence d'un film d'YBCO semi-conducteur de 800 nm d'épaisseur

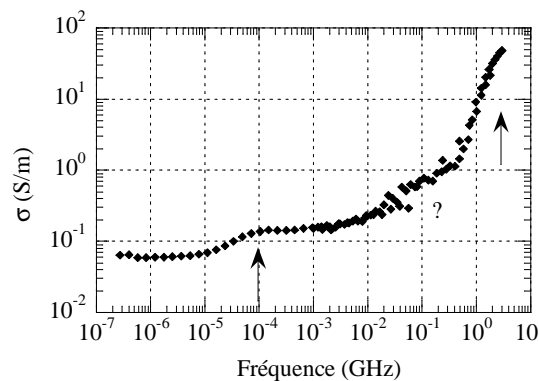


Figure 3 : Conductivité σ en fonction de la fréquence d'un film d'YBCO semi-conducteur de 800 nm d'épaisseur (les flèches indiquent les zones des relaxations supposées)

4. DISCUSSION

4.1 Relaxations

Sur la figure 3, on observe différentes zones de variation de la conductivité σ en fonction de la fréquence. À basse fréquence, jusqu'à environ 10 kHz, la conductivité est presque constante avec une valeur d'environ 6.10^{-2} S/m.

Entre 10 et 100 kHz, la conductivité augmente puis atteint un second palier et redevient constante à environ 0,14 S/m. Cette variation de la conductivité indique une relaxation du matériau. En effet, on observe également une diminution plus rapide de ε'' dans cette gamme de fréquence. ε'' diminue moins rapidement également mais ce n'est pas bien visible sur la courbe. Afin de déterminer la fréquence de relaxation dans cette zone, nous avons utilisé le modèle de Debye que nous présenterons dans le paragraphe suivant.

Dans les moyennes fréquences, entre 10 MHz et 100 MHz, l'évolution de la conductivité pourrait également indiquer une relaxation. Mais les mesures dans cette zone présentent plus d'incertitude. On observe sur la figure 1 une instabilité sur la courbe de ε'' . Il est donc difficile de conclure. D'autres mesures sont nécessaires pour confirmer cette hypothèse.

Entre 500 MHz et 2 GHz, on observe une augmentation rapide de la conductivité qui semble s'infléchir à 2 GHz. σ évolue alors selon une courbe en f^2 . On observe clairement sur la figure 1 une augmentation de ε'' qui semble atteindre un maximum à 2 GHz. Cela s'apparente à un début de relaxation. Des mesures à plus haute fréquence pourraient compléter ces allures de relaxation. Mais nous sommes limités en fréquence en raison de la faible épaisseur des films d'YBCO. Une solution serait de caractériser les films à plus basse température. Les fréquences de relaxations varient en général avec la température selon une loi d'Arrhenius [7]. Elles sont d'autant plus faibles que la température est basse. On pourrait donc, à basse température, observer cette relaxation complètement avant la fréquence limite de caractérisation de 2 GHz.

4.2 Modèle de Debye

Les relaxations dans les solides peuvent être modélisées par le modèle de Debye. Celui-ci modélise le matériau par deux condensateurs en série, avec une résistance dans une des 2 branches. Les deux condensateurs simulent deux sources différentes de la permittivité électrique du matériau, donc la permittivité relative comporte deux composantes :

$$\varepsilon = \varepsilon_{high} + \varepsilon_{low} \quad , \quad (\text{équation-2})$$

où ε_{high} est la permittivité aux hautes fréquences après la chute et ε_{low} est celle aux basses fréquences avant la chute. L'équation de Debye est la suivante :

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_{high} + \frac{\varepsilon_{low} - \varepsilon_{high}}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (\text{équation-3a}) \quad \varepsilon''(\omega) = \frac{(\varepsilon_{low} - \varepsilon_{high})\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} + \frac{\sigma_0}{\omega} \quad (\text{équation-3b})$$

τ est le temps de relaxation et σ_0 est la conductivité électrique en courant continu. La fréquence de relaxation f_{rel} est égale à l'inverse de τ . La relation entre les deux expressions est donc :

$$\left[\varepsilon'(\omega) - \frac{\varepsilon_{low} + \varepsilon_{high}}{2} \right]^2 + \varepsilon''(\omega)^2 = \left[\frac{\varepsilon_{low} - \varepsilon_{high}}{2} \right]^2 \quad (\text{équation-4})$$

La courbe représentative de la variation de $\varepsilon''(\omega)$ en fonction de $\varepsilon'(\omega)$ décrit donc un demi-cercle de centre $\left[\frac{\varepsilon_{low} + \varepsilon_{high}}{2}, 0 \right]$ et de rayon $\frac{\varepsilon_{low} - \varepsilon_{high}}{2}$.

Nous avons utilisé ce modèle avec les résultats obtenus sur les films d'YBCO semi-conducteurs. La première étape était de déterminer la permittivité basse fréquence ε_{low} . Pour cela, nous avons représenté ε'' en fonction de ε' et trouvé l'équation de la droite correspondant à l'évolution à basse fréquence. On obtient une permittivité $\varepsilon_{low} = 40\,900$. On peut ensuite soustraire cette variation linéaire aux valeurs mesurées pour obtenir une variation de ε'' en fonction de ε' à l'allure d'un demi-cercle. En ajustant l'équation du cercle donnée par le modèle de Debye aux valeurs mesurées, nous avons obtenu une fréquence de relaxation de 37 kHz et une valeur de $\varepsilon_{high} = 1132$.

L'origine de cette relaxation à 37 kHz peut être associée à la présence de grains dans le matériau et à la constante de temps caractérisant l'orientation des dipôles de ces grains. La présence de grains dans nos films minces d'YBCO semi-conducteurs a été montrée par des caractérisations au microscope à force atomique (AFM) et à l'AFM à pointe conductrice [1]. Les grains ont une taille moyenne de 60 nm. Des études de diffraction aux rayons X sur ces mêmes couches ont montré que le matériau est amorphe. Ainsi, si les grains contiennent des nano-cristaux d'YBCO et sont orientés de façon aléatoire, cela conduit à l'observation de la structure amorphe au niveau global.

Butler et al. ont effectué des caractérisations diélectriques de films d'YBCO semi-conducteurs mais déposés en tricouches Nb/YBCO/Nb, jusqu'à une fréquence de 1 kHz uniquement [8]. Ils présentent une première relaxation vers 100 Hz. Nous n'avons pas d'autres points de comparaison à plus haute fréquence.

La relaxation à plus haute fréquence pourrait être due à la présence de polarons ou de bipolarons dans le matériau [9].

5. CONCLUSION

Nous avons effectué des caractérisations diélectriques entre 40 Hz et 2 GHz de films d'YBaCuO semi-conducteurs déposés sur des substrats de MgO. Les résultats montrent des permittivités élevées et une conductivité faible. Des relaxations sont visibles. La première à 37 kHz peut être due à la présence de grains dans le matériau. Une autre relaxation débute en fin de bande de fréquence. Des mesures à plus basses températures devraient permettre de l'observer complètement. Ces caractérisations diélectriques associées à des caractérisations structurales du matériau nous ont permis de commencer à mieux comprendre le comportement de ce matériau semi-conducteur.

6. REFERENCES

- [1] M. Longhin, A.J. Kreisler, A.F. Degardin, *Materials Science Forum*, Vol 587-588 (2008), pp. 273-277.
- [2] A. Jahanzeb, C. M. Travers, Z. Çelik-Butler, D. P. Butler and S. G. Tan, *IEEE Trans. Electron Devices* Vol. 44 (1997), p. 1795.
- [3] M. B. Duttb and V. Mittal, *Journal of Applied Physics* Vol. 97 (2005), p.083704
- [4] V. Mishal, G. Klisnick, G. Sou, M. Redon, A. J. Kreisler and A. F. Dégardin, *Cryogenics* Vol. 49 N° 11 (2009), pp. 615-619.
- [5] E. Young, *Proceedings of the Space Astrophysics Detectors and Detector Technologies Conference*, held at the STScI, Baltimore (2000). (http://www.stsci.edu/stsci/meetings/space_detectors/gdfi.htm)
- [6] Nour-Eddine Belhadj-Tahar, Olivier Meyer & Arlette Fourier-Lamer, *IEEE Trans. on Microwave Theory and Tech.*, Vol. 45, N°. 2, (1997), pp. 260-267.
- [7] C.R. Mariappan, G. Govindaraj, S. Vinoth Rathan and G. Vijaya Prakash, *Materials science & engineering B, Solid-state materials for advanced technology*, Vol. 121 (2005), No1-2, pp. 2-8.
- [8] John E. Gray, Z. Çelik-Butler, Donald P. Butler, Agha Jahanzeb, *Ferroelectrics*, Vol. 209 (1998), Issue 1, pp.517 – 539.
- [9] K. Yamamoto and H. Namikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol 28 (1989), p. 2523.