Явление усталости в эпитаксиальных пленках цирконата-титаната свинца

© В.Я. Шур, Н.Ю. Пономарев, Н.А. Тонкачева, С.Д. Макаров, Е.В. Николаева, Е.И. Шишкин, Л.А. Суслов*, Н.Н. Салащенко*, Е.Б. Клюенков*

Научно-исследовательский институт физики и прикладной математики при Уральском государственном университете, 620083 Екатеринбург, Россия * Институт физики микроструктур Российской академии наук,

603000 Нижний Новгород, Россия

(Поступила в Редакцию 15 ноября 1996 г.)

Потенциальное применение тонких сегнетоэлектрических пленок в энергонезависимой памяти стимулирует исследование механизмов, обусловливающих явление усталости (fatigue) — уменьшение переключаемого заряда в результате длительного циклического переключения знакопеременными импульсами [1].

Эпитаксиальные гетероструктуры PbZr_{0.52}Ti_{0.48}O₃/ YBa₂Cu₃O_{7-x} были получены лазерным напылением на ориентированные монокристаллические пластины (001) SrTiO₃. Верхний электрод площадью около $4 \cdot 10^{-4}$ mm² был изготовлен магнетронным распылением никеля. Параметры структур и технология их получения описаны в [2,3].

Известно, что сложная эволюция доменной структуры при "сверхбыстром" (субмикросекундном) переключении поляризации в тонких сегнетоэлектрических пленках не может быть исследована прямыми методами (визуализирована). Приходится использовать косвенные методы, измеряя интегральные характеристики, такие как ток переключения. К тонкопленочному сегнетоэлектрическому конденсатору прикладывалась последовательность парных биполярных импульсов (длительность $20\,\mu$ s, частота повторения 1 kHz, время нарастания не более 10 ns) и регистрировалось падение напряжения на последовательном сопротивлении 1.5 Ω с разрешением по времени до 5 ns. Для получения собственно тока переключения емкостная составляющая тока (полученная во втором импульсе) численно вычиталась из результатов измерений при воздействии первого импульса [4,5].

Ранее нами было показано [6,7], что математическая обработка тока переключения, учитывающая топологические превращения в ограниченном объеме, позволяет определять параметры, описывающие эволюцию доменной структуры, а также геометрию и размеры доменов в исходной доменной структуре.

По определению форма тока переключения имеет вид

$$j(t) = 2P_s \Big(dq(t)/dt \Big), \tag{1}$$

где P_s — величина спонтанной поляризации, а q(t) — доля объема, которая занята не успевшими переключиться доменами.

Было показано также [6–8], что при "анизотропном ограничении", вызванном анизотропией формы переклю-

чаемого объема, процесс переключения разбивается на стадии с различной размерностью. В тонких пленках РZT анизотропия ограничения связана с особенностями исходной доменной структуры, состоящей из узких чередующихся областей, занятых *a*- и *с*-доменами (схема на рис. 1) [9–11]. Известно, что плотность и размеры *a*-доменов в тонких пленках зависят от несоответствия параметров решетки и различия коэффициентов термического расширения подложек и пленок [12]. При быстром переключении 90° доменные стенки практически неподвижны, и 180° переключение происходит независимо в "анизотропных" узких полосках.

Для анализа токов при неполном переключении учтем роль остаточных доменов. Рассмотрим β -процесс [6,13,14] при двумерном росте доменов в объеме прямоугольной формы площадью $S = AL^2$, где A — анизотропия объема (отношение длин сторон прямо-



Рис. 1. Явление усталости в эпитаксиальной гетероструктуре PZT/YBCO. На вставке — схема изменения доменной структуры в результате усталости.

30

Switching charge, nC

20

10

угольной полоски). Тогда

$$q(t) = \begin{cases} \exp\left[-(t/t_{01})^2(1-t/t_m)\right], & t < t_{\text{cat}}, \\ \exp\left[-(t/t_{02})\right], & t_{\text{cat}} < t, \end{cases}$$
(2)

где $t_{cat} = L/v$ — время катастрофы (геометрического превращения), L — ширина переключаемого объема (среднее расстояние между соседними *а*-доменами), v — скорость бокового роста 180° доменных стенок, $t_{01} = (C_1N_0/A)^{-1/2}t_{cat}, t_{02} = (C_2N_0/A)^{-1}t_{cat}, C_1 и C_2$ — характерные времена и константы формы для начальной и заключительной стадий переключения, N_0 — количество остаточных доменов, $t_m = C_1(C_1 - C_2)^{-1}t_{cat}$ — характерное время, учитывающее взаимодействие растущих доменов с границами переключаемого объема.

Типичная зависимость величины переключаемого заряда от количества циклов переключения приведена на рис. 1. После $3 \cdot 10^9$ циклов переключаемый заряд уменьшается на 23%. Наблюдаемое изменение может быть отнесено за счет перестройки доменной структуры. Для определения того, как усталость изменяет доменную структуру, измеренные импульсы токов переключения аппроксимировались формулами (1), (2) (рис. 2).

Анализ зависимостей подгоночных параметров от количества циклов (рис. 3) позволил количественно описать изменение состояния статической доменной структуры, существующей в паузах между импульсами. Удалось показать, что после $3 \cdot 10^9$ циклов среднее расстояние между *а*-доменами *L* и средняя константа формы на первой стадии процесса переключения *C*₁ уменьшались



Рис. 2. Зависимость от времени тока переключения в эпитаксиальной гетероструктуре PZT/YBCO после 3 · 10⁹ циклов переключения. Экспериментальные точки аппроксимированы формулами (1), (2).



Рис. 3. Изменение аппроксимационных параметров (характерных времен) в результате усталости.

в 1.3 раза, а количество остаточных доменов N_0 увеличивалось в 1.2 раза. Скорость роста доменов v при этом практически не изменялась.

Таким образом, явление усталости при циклическом переключении в эпитаксиальных гетероструктурах может быть отнесено за счет неполного переключения *с*доменов и появления дополнительных 90° доменных стенок в доменной структуре, существующей в паузе между импульсами (схема на рис. 1). Кинетика усталости определяется параметрами исходной доменной структуры и должна существенно зависеть как от условий получения гетероструктуры, так и от вида подложек.

Приведенные исследования выполнены при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 96-02-19588).

Список литературы

- [1] J.F. Scott, C.A. Paz de Araujo. Science 246, 1400 (1989).
- [2] В.Я. Шур, С.Д. Макаров, Н.Ю. Пономарев, В.В. Волегов, Н.А. Тонкачева, Л.А. Суслов, Н.Н. Салащенко, Е.Б. Клюенков. ФТТ 38, 6, 1889 (1996).
- [3] V.Ya. Shur, S.D. Makarov, N.Yu. Ponomarev, V.V. Volegov, N.A. Tonkachyova, L.A. Suslov, N.N. Salashchenko, E.V. Kluenkov. Microelectron. Eng. 29, 153 (1995).
- [4] K. Dimmler, M. Parris, D. Butler, S. Eaton, B. Pouligny, J.F. Scott, Y. Ishibashi. J. Appl. Phys. 61, 12, 5467 (1985).

- [5] J.F. Scott, L. Kammerdiner, M. Parris, S. Traynor, V. Ottenbacher, A. Shewabkeh, W.F. Oliver. J. Appl. Phys. 64, 2, 787 (1988).
- [6] V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, S.D. Makarov, V.V. Volegov. Integrated Ferroelectrics 5, 4, 293 (1994).
- [7] В.Я. Шур, Е.Л. Румянцев, С.Д. Макаров. ФТТ 37, 6, 1687 (1995).
- [8] V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, S.D. Makarov. Ferroelectrics 172, 361 (1995).
- [9] M. Klee, U. Machens, A. de Veirman. Ferroelectrics 140, 211 (1993).
- [10] M. Huffman, J. Zhu, M.M. Al-Jassim, Ferroelectrics 140, 191 (1993).
- [11] A. Seifert, F.F. Lange, J.S. Speck. J. Mater. Res. 10, 3, 680 (1995).
- [12] J.S. Speck, A. Seifert, W. Pompe, R. Ramesh. J. Appl. Phys. 76, 1, 477 (1994).
- [13] А.Н. Колмогоров. Изв. АН СССР. Сер. мат. 3, 355 (1937).
- [14] M. Avrami. J. Chem. Phys. 7, 1103 (1939); 9, 17 (1941).