Пиро- и фотоотклик в конденсаторных структурах на основе тонких пленок ЦТС

© А.А. Богомолов, О.Н. Сергеева, Д.А. Киселев, И.П. Пронин*, В.П. Афанасьев**

Тверской государственный университет, 170002 Тверь, Россия * Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия ** Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет "ЛЭТИ", 197376 Санкт-Петербург, Россия E-mail: petrovich@mail.ioffe.ru

Исследован фото- и пироэлектрический отклик тонких сегнетоэлектрических пленок Pb(Zr_{0.54}Ti_{0.46})O₃ (ЦТС) под действием лазерного излучения с длиной волны 0.63 µm и внешнего электрического поля при разных температурах. Пленки получены ВЧ магнетронным распылением керамической мишени ЦТС на платинированные подложки. Обнаружено увеличение фоточувствительности пленок ЦТС как после коммутации внешнего постоянного электрического поля, так и с ростом температуры.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 04-02-16738) и программы Минобразования РНП 2.1.1.3674.

PACS: 77.70.+a, 72.40.+w

Сравнительное изучение фото- и пироэлектрических свойств тонкопленочных сегнетоэлектрических структур представляет интерес для дальнейшего развития физики сегнетоэлектриков и сегнетоэлектриковполупроводников [1,2]. В настоящее время имеется ряд исследований, посвященных изучению фото- и пироэлектрических свойств, выполненных на тонких пленках цирконата-титаната свинца Pb(Zr,Ti)O3 (ЦТС). В работе [3] показано, что возникающая в керамических сегнетоэлектриках фотоэдс является суммой падений напряжения на отдельных зернах и имеет ту же полярность, что и пироотклик. Поведение пироэлектрического и фотовольтаического токов эпитаксиальных пленок ЦТС, где в качестве подложки использовался SrTiO₃, а в качестве одного из электродов высокотемпературный сверхпроводник ҮВСО, изучено в [4,5]. Было показано наличие фототока короткого замыкания при освещении данной структуры Не-Neлазером. В работе [6] в пленках ЦТС (45/55) при освещении последних ультрафиолетовым светом с длиной волны $\lambda = 350 \,\mathrm{nm}$ обнаружено наличие фототока, связанного с направлением остаточной поляризации. Не зависящие от поляризации фотовольтаические эффекты в сегнетоэлектрических тонких пленках ЦТС, полученных золь-гель методом, исследованы в работе [7], в которой сделан вывод о преобладающем вкладе барьерных механизмов в появление этих эффектов.

Целью настоящей работы являлось сравнительное исследование фото- и пиротоков, наблюдаемых в пленках ЦТС, при разных температурах и внешних электрических полях.

Тонкие пленки ЦТС, осажденные на платинированные подложки из ситалла (температура осаждения 130°С, температура отжига 550°С), представляли собой слои толщиной $0.5-0.7\,\mu$ m, обладавшие выраженной (111)-текстурой. Структурные исследования показали отсутствие инородных макроскопических фаз и включений. Размер верхних платиновых электродов составлял $130-150\,\mu$ m в диаметре.

Исследования фото- и пироэлектрических откликов пленок ЦТС проводились динамическим методом с применением модуляции световыми импульсами прямоугольной формы. В качестве источника светового излучения применялся лазер ЛГН-222 (длина волны $\sim 0.63\,\mu{
m m}$), мощность которого составляла 30 mW. Лазерное излучение фокусировалось на поверхности пленки в пятно диаметром 0.5 mm. Частота модуляции светового потока составляла 24 Hz. Сигнал фото- и пироотклика снимался с включенного последовательно с образцом сопротивления 1 МΩ и усиливался широкополосным усилителем У4-28 (коэффициент усиления 100). Выходной сигнал с усилителя подавался на один из входов двухлучевого осциллографа, по которому определялась амплитуда сигнала. На всех осциллограммах использовались одинаковые масштабы, указанные на рис. 4.

При комнатной температуре в пленках ЦТС во внешних постоянных электрических полях до 50-70 kV/ cm фототок остутствует и наблюдается лишь пироэлектрический отклик (рис. 1). Однако при переполяризации пленок ЦТС на фоне пироотклика появляется фототок. На рис. 2, *а* представлена форма пироотклика от структуры, находящейся под действием направленного от нижнего интерфейса к верхнему электрического поля. При его коммутации возникает ток, направление которого совпадает с направлением внешнего приложенного электрического поля (рис. 2, *b*). Исходя из этого, мы делаем вывод о том, что этот сигнал имеет фотоэлектрическую природу. Его величина уменьшает-





Рис. 1. Пироотклик в пленке ЦТС, находящейся под действием внешнего поля ($a - E_+ = 50 \text{ kV/ cm}$, $b - E_- = 50 \text{ kV/ cm}$). E_+ показывает, что поле направлено от нижнего интерфейса к верхнему; E_- — в обратном направлении. Температура измерения 20°С.

ся во времени при воздействии последующих световых импульсов (рис. 2, c, d). Параллельно наблюдается увеличение пироэлектрического отклика, направление которого противоположно исходному (рис. 2, a). Аналогичная картина имеет место при изменении направления электрического поля. Возникающий при коммутации электрического поля фототок является неустойчивым во времени и релаксирует до нуля за несколько секунд.

В сильных электрических полях ($E > 120 \, \text{kV/cm}$) появляется низкочастотный шум, не позволяющий наблюдать при комнатной температуре как пиро-, так и фотоотклик. Увеличение температуры измерений, начиная с 75°С, устраняет этот недостаток. На рис. 3 представлена осциллограмма пиро- и фототока, полученная для пленки ЦТС, находящейся при температуре 170°С, на которой видна преобладающая роль фототока. Временной ход фототока на участках нарастания и спада описывается экспоненциальными зависимостями $I(t) \sim [1 - \exp(t/\tau)]$ и $I(t) \sim \exp(t/\tau)$, а постоянные времени для полученной кривой составляют 10 и 13 ms соответственно. При подключении конденсатороной структуры непосредственно на вход усилителя без источника внешнего электрического поля и воздействии импульсов освещения фиксируется слабый отклик только пиротока, т. е. фототок при этих условиях измерений наблюдать не удалось, что может быть связано с недостаточной пороговой чувствительностью измерительной установки.

Однако в случае, если пироток превалирует над фототоком при наличии электрического поля в момент воздействия светового потока (рис. 4, a), на такой структуре удается наблюдать фототок и при отсутствии внешнего поля (рис. 4, b). Как видно из рис. 4, a, при воздействии лазерного излучения на пленку направления пироотклика (кривая I) и фототока (кривая 2) противоположны и определяются направлением внешнего поля,



Рис. 2. Временная последовательность осциллограмм фотои пирооткликов пленки ЦТС, отделенных друг от друга интервалами в 2 s: a — при приложении внешнего поля $E_+ = 50 \text{ kV/ cm}; b-d$ — после коммутации поля. Температура измерения 20° C.



Рис. 3. Фото- и пироотклики пленки ЦТС, находящейся под полем $E_+ = 120 \text{ kV/cm}$ при температуре измерения 170°С.





Рис. 4. Фото- и пироэлектрические отклики пленки ЦТС, находящейся под воздействием внешнего электрического поля $E_{-} = 70 \text{ kV/cm} (a)$ и после выключения внешнего поля (b). Температура измерения 170° С. I — пироток, 2 — фототок.

причем фототок совпадает с направлением внешнего поля. Наблюдаемая картина стабильна во времени как по пиро-, так и по фотоотклику. При снятии внешнего электрического поля с образца (рис. 4, b) направление пиротока (кривая I) остается неизменным, а фототок (кривая 2) изменяет направление на противоположное по отношению к наблюдаемому фототоку под полем (рис. 4, a).

Сам факт возникновения фотоэлектрического тока в данных экспериментальных условиях представляется интересным, свидетельствующим о возможности появления фотопроводимости при возбуждении светом с энергией квантов, меньшей ширины запрещенной зоны. Условия эксперимента таковы, что прямой доступ световых фотонов в межэлектродное пространство затруднен наличием полупрозрачного верхнего платинового электрода толщиной 40 nm. Однако диаметр лазерного луча значительно превышал площадь электрода, поэтому был возможен дрейф фотоносителей в межэлектродное пространство из областей, прилегающих к электроду. Данная модель возникновения фототока короткого замыкания в образцах, имеющих непрозрачные электроды, ранее использовалась в работе [7].

Достаточно интересным представляется обнаруженный в данной работе факт появления фотопроводимости пленок ЦТС в момент коммутации внешнего электрического поля и ее релаксации до нуля с течением времени (рис. 2). Данное явление может быть объяснено тем, что при переключении пленки ЦТС происходит изменение параметров системы энергетических уровней, находящихся в запрещенной зоне [2]. В связи с этим появление фоточувствительных центров в момент коммутации внешнего поля представляется достаточно обоснованным. Усиление данного явления с ростом температуры можно объяснить увеличением числа таких центров.

В отличие от полученных в [7] результатов, свидетельствующих о независимости знака и величины тока короткого замыкания от направления и величины остаточной поляризации предварительно поляризованной пленки ЦТС, на исследованных пленках наблюдается фототок в отсутствии внешнего электрического поля, совпадающий по направлению с пиротоком, как и в работе [3]. Качественное объяснение возникновения этого фототока (рис. 4, b) сводится к двум дополняющим друг друга моделям. С одной стороны, должен иметь место фотовольтаический отклик, пропорциональный остаточной поляризации [2,6]. С другой стороны, при приложении к электродам пленки внешнего поля может наблюдаться миграционная поляризация, дополнительно стимулированная инжекцией носителей заряда из электродов в пленку, с последующим захватом носителей на глубоких ловушках интерфейсов. Наличие инжекции из электродов подтверждается в нашем случае возникновением больших по амплитуде низкочастотных шумов [8]. Образовавшийся при этом пространственный заряд создает внутреннее электрическое поле, вектор напряженности которого направлен в сторону, противоположную внешнему приложенному полю. В этом поле, сохраняющемся после снятия с сегнетоэлектрического конденсатора внешнего напряжения, и наблюдается фототок "короткого замыкания", совпадающий по направлению с пиротоком.

Таким образом, в тонких пленках ЦТС наблюдаются фототоки, величина и направление которых зависят от условий поляризации и температуры.

Список литературы

- В.М. Фридкин. Сегнетоэлектрики-полупроводники. Наука, М. (1976). 264 с.
- [2] В.М. Фридкин. Фотосегнетоэлектрики. Наука, М. (1979). 408 с.
- [3] P.S. Brody, F. Crowne. Journal of Electronic Materials 4, 955 (1975).
- [4] J. lee, S. Esayan, J. Prohaska, A. Safari. Appl. Phys. Lett. 64, 3, 294 (1994).
- [5] J. lee, S. Esayan, A. Safari, R. Ramesh. Integrated Ferroelectrics 6, 289 (1995).
- [6] A. Kholkin, O. Boarkine, N. Setter. Appl. Phys. Lett. 72, 1, 130 (1998).
- [7] В.К. Ярмаркин, Б.М. Гольцман, М.М. Казанин, В.В. Леманов. ФТТ 42, 3, 511 (2000).
- [8] А. ван дер Зил. Шумы при измерениях. Мир, М. (1979). 292 с.