

06,13

Электропроводность и барьерные свойства тонких пленок ниобата лития*

© С.И. Гудков¹, К.Д. Бакланова¹, М.В. Каменщиков¹, А.В. Солнышкин^{1,2}, А.Н. Белов²

¹ Тверской государственный университет,
Тверь, Россия

² Национальный исследовательский университет „Московский институт электронной техники“,
Москва, Зеленоград, Россия

E-mail: sergej-gudkov-i@yandex.ru

Методами вольт-фарадных и вольт-амперных характеристик исследованы тонкопленочные структуры на основе LiNbO_3 , сформированные различными способами: методом лазерной абляции и методом магнетронного распыления. По вольт-фарадным характеристикам определена величина потенциального барьера на интерфейсе Si-LiNbO_3 для обоих типов пленок. Анализ вольт-амперных характеристик выявил наличие в исследуемых структурах нескольких механизмов проводимости. В пленке LiNbO_3 , изготовленной методом лазерной абляции, основной вклад в электропроводность дают эффект Пула–Френкеля и токи, ограниченные пространственным зарядом. В пленочной гетероструктуре, изготовленной методом магнетронного распыления, основной механизм — токи, ограниченные пространственным зарядом.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант № 15-19-00138).

DOI: 10.21883/FTT.2018.04.45685.09D

Одним из важнейших сегнетоэлектрических соединений, применяемых в оптоэлектронике, является ниобат лития (LiNbO_3) [1,2]. В настоящее время частым явлением стало использование этого материала в виде пленок, свойства которых зачастую зависят от способа их синтеза, типа подложки, материалов электродов, а также структурных несовершенств и примесей, что делает актуальным исследование этих структур [3].

Ниобат лития обладает отличными электрооптическими, нелинейными и акустооптическими свойствами, что позволяет его использовать в фотонике [4]. LiNbO_3 может легко легироваться редкоземельными ионами с целью получения материала для применения в лазерной технике. Периодически поляризованный LiNbO_3 используется для изготовления оптических параметрических генераторов для создания перестраиваемых лазеров в видимом и среднем инфракрасном излучении, тандемно-полюсные кристаллы ниобата лития — для широкополосного источника зеленого света, лазерных проекторов или дисплейных устройств, а также как материал фотонного запрещенного зазора. Кроме того, существует значительный интерес к микроструктурированию кристаллов ниобата лития для их использования в микроэлектромеханической системе (MEMS) [5,6].

Цель данной работы заключается в исследовании барьерных эффектов и механизмов проводимости структур с тонким сегнетоэлектрическим слоем LiNbO_3 , нанесенным различными методами, поскольку данные свойства влияют на работу функциональных элементов на основе пленок ниобата лития.

* Доклад на XIV Международной конференции „Физика диэлектриков“ (Санкт-Петербург, 29 мая–2 июня 2017 г.)

Материалы конференции частично опубликованы в выпуске № 3 за 2018 г. журнала „Физика твердого тела“.

Исследования проводились на тонкопленочных структурах $\text{Cu/LiNbO}_3/\text{Si}$, изготовленных в НИТУ „МИСИС“. Нанесение ниобата лития на кремниевую подложку толщиной 0.54 ± 0.01 мм осуществлялось методом лазерной абляции (образец № 1). Толщина слоя LiNbO_3 составляла 100 нм. Стоит отметить, что поверхность образца не является гладкой. На свободную поверхность пленки методом магнетронного распыления были нанесены медные электроды диаметром 2.45 ± 0.05 мм. Образец № 2 получен методом магнетронного распыления [7]. Для данного образца толщина кремниевой подложки составляет 0.53 ± 0.01 мм. Толщина слоя LiNbO_3 в этом случае — 200 нм. Для данного образца диаметр медных электродов, нанесенных на свободную поверхность пленки, составил 2.4 ± 0.2 мм.

Фазовый состав данных образцов, полученных методом магнетронного распыления, исследовался ранее [7]. В данной работе показано, что наряду с фазой LiNbO_3 в исследованных образцах существует и фаза LiNb_3O_8 . Соотношение фаз в пленках можно изменить путем постростового отжига. В исследуемых нами пленках фаза LiNb_3O_8 практически отсутствует. Для образца, полученного методом лазерной абляции, наблюдается аналогичная картина.

На данный момент считается [8], что имеется две компоненты, вносящие вклад в проводимость ниобата лития: ионная, связанная с ионами H^+ , неконтролируемо входящими в состав ниобата лития в процессе роста кристалла, и электронная, имеющая место при более низких температурах. Используемые для нанесения пленок ниобата лития кремниевые подложки имели p -тип проводимости.

Для определения барьерных свойств исследуемых структур были получены вольт-фарадные характеристики (ВФХ) с помощью измерителя иммитанса E7-20

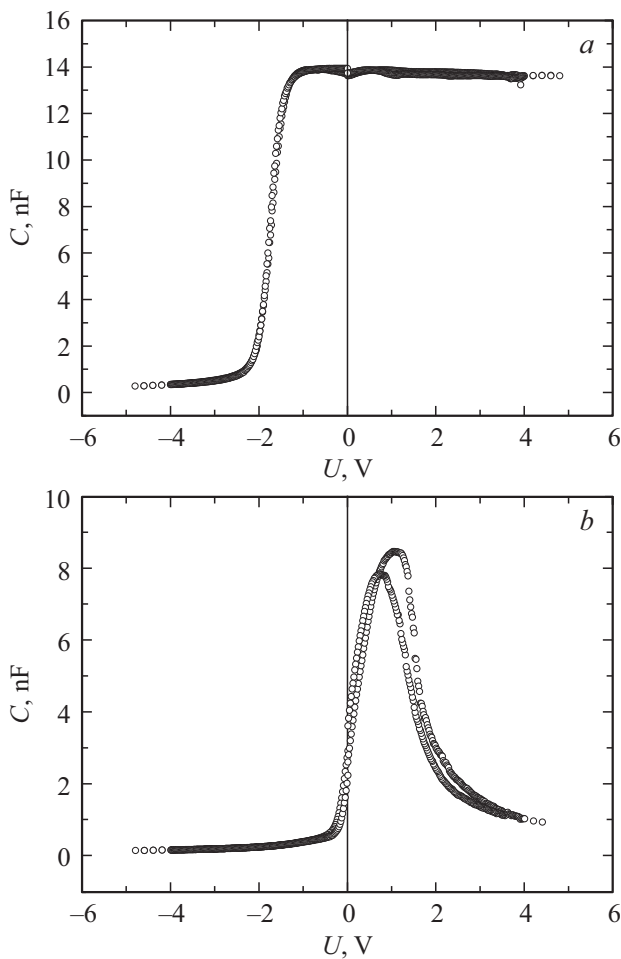


Рис. 1. Вольт-фарадные характеристики для образцов $\text{Cu}/\text{LiNbO}_3/\text{Si}$: *a* — образец № 1, *b* — образец № 2.

в синусоидальных полях амплитудой 0.04 V и частотой 1 kHz . Задержка перед измерением значения емкости при определенной величине напряжения смещения составляла 1 s . Вольт-амперные характеристики (ВАХ) получены при приложении постоянного напряжения в интервале от -5 до 5 V . Напряжение считается положительным при приложении положительного потенциала к верхнему электроду пленочного образца и отрицательным при обратном приложении потенциалов.

На рис. 1 показаны ВФХ, полученные в результате исследования диэлектрических свойств. Из графика, представленного на рис. 1, *a*, видно, что для образца № 1 в интервалах от -5 до -2.5 V и от -1 до 5 V емкость меняется в незначительных пределах (от 0.3 до 0.8 nF и от 13.9 до 13.6 nF соответственно). В интервале от -2.5 до -1 V емкость претерпевает значительное изменение, достигая максимального значения в районе -1 V . Для ВФХ образца № 2, показанных на рис. 1, *b*, при приложении положительного напряжения наблюдается максимум, а также несовпадение прямого и обратного ходов. Одной из возможных причин наличия максимума является переполяризация сегнетоэлектрического слоя.

Для первого образца вклад процессов переключения поляризации в диэлектрический отклик может быть завуалирован некоторыми эффектами, в частности более сильным изменением емкости барьерного слоя, по сравнению со вторым образцом. Также процессы переключения достаточно сложно наблюдать в образцах с высокой удельной проводимостью, механизмы образования которой в пленках ниобата лития обсуждаются далее.

На основе вольт-фарадных характеристик определена величина потенциального барьера на интерфейсе $\text{Si}-\text{LiNbO}_3$ согласно [9]. Данная модель была использована для случая сегнетоэлектрика в работах [10,11]. Известно, что дифференциальная емкость $C = dQ/dU$ для гетероструктуры при отрицательном смещении (U_{rev}) может быть представлена в следующем виде:

$$C^{-2} = (2/S^2 q N_d \epsilon_n) (\phi_b - \xi + U_{\text{rev}} - kT/q), \quad (1)$$

где S — площадь контакта, q — эффективный заряд носителей, N_d — концентрация донорных уровней, ϵ_n — диэлектрическая проницаемость полупроводника, ϕ_b — величина потенциального барьера, $\xi = (kT/q) \ln(N_c/N_d)$ — расстояние от уровня Ферми

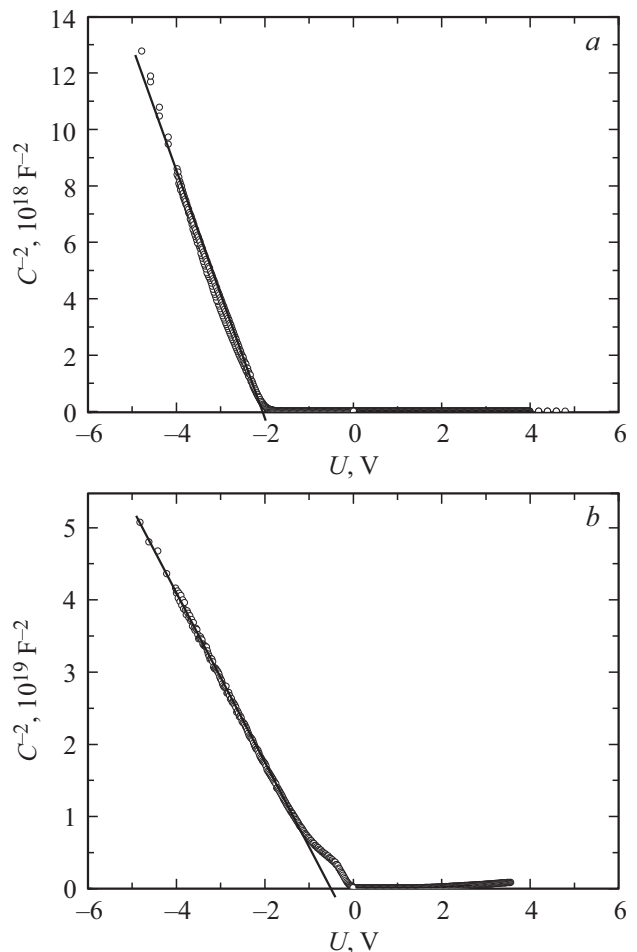


Рис. 2. Зависимости C^{-2} от U для тонкопленочных структур $\text{Cu}/\text{LiNbO}_3/\text{Si}$: *a* — образец № 1, *b* — образец № 2.

до дна валентной зоны, N_c — эффективная плотность состояний, k — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура.

В этом рассмотрении считаем, что проводимость кремниевой подложки близка к металлической, поэтому с определенной степенью точности применение соотношения (1) допустимо для нашего случая. Таким образом, экстраполяция кривой $C^{-2}(U)$ к оси абсцисс дает значение встроенного потенциала V_b , из которого можно определить величину потенциального барьера согласно формуле

$$\phi_b = V_b + \xi + kT/q, \quad (2)$$

где V_b — напряжение отсечки. Величина $\xi + kT/q$ крайне мала, что делает возможным при вычислении ϕ_b ограничиться только величиной напряжения отсечки V_b . На рис. 2 представлены графики зависимости $C^{-2}(U)$ для исследуемых образцов с экстраполяцией по отрицательным напряжениям.

При анализе полученных зависимостей $C^{-2}(U)$ было установлено, что высота потенциального барьера для интерфейса Si–LiNbO₃ для образца №1 составляет около 2 eV, а для образца №2 — около 0.5 eV.

Методом вольт-амперных характеристик проведены исследования электропроводности обоих образцов тонких пленок ниобата лития. Результаты измерений приведены на рис. 3. Как следует из представленных зависимостей тока от приложенного напряжения, в пленках проявляются различные механизмы проводимости, соответствующие определенным интервалам электрических полей.

Известно [12], что в пленочных структурах возможен вклад в электропроводность следующих механизмов проводимости: эффект Пула–Френкеля, эффект Шоттки, токи, ограниченные пространственным зарядом, туннелирование Фаулера–Нордгейма и др.

Эффект Пула–Френкеля, согласно [13], заключается в изменении величины потенциальных барьеров, преодолеваемых носителями заряда, между атомами кристаллической решетки при приложении поля. Этот эффект описывается следующей зависимостью:

$$J \propto E \exp\left(\frac{q}{kT} \left[2\sqrt{\frac{qE}{4\pi\epsilon_0\epsilon_\infty}} - \phi_t \right] \right), \quad (3)$$

где J — плотность тока, E — напряженность приложенного поля, ϵ_0 — электрическая постоянная, ϵ_∞ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость, ϕ_t — величина потенциального барьера.

Эффект Шоттки связан с уменьшением высоты потенциального барьера на интерфейсе при приложении поля. Данный эффект описывается следующим соотношением:

$$J = A^* T^2 \exp\left(\frac{q}{kT} \left[\sqrt{\frac{qE}{4\pi\epsilon_0\epsilon_\infty}} - \phi_b \right] \right), \quad (4)$$

где A^* — постоянная Ричардсона.

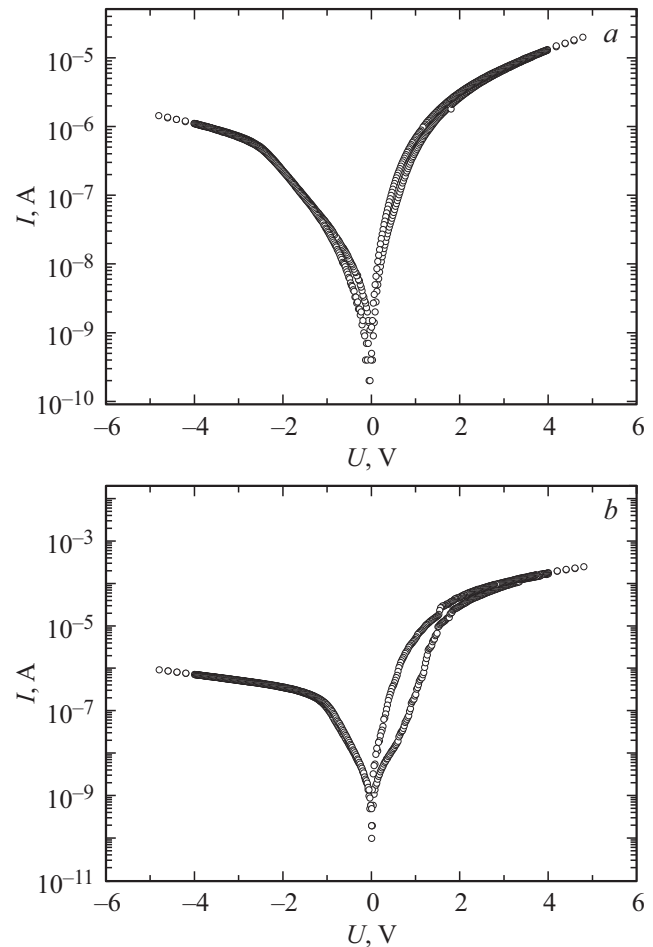


Рис. 3. Вольт-амперные характеристики для тонкопленочных структур Cu/LiNbO₃/Si, представленные в полулогарифмическом масштабе: а — образец № 1, б — образец № 2.

Токи, зависящие от находящегося в объеме полупроводника заряда, называются токами, ограниченными пространственным зарядом (ТОПЗ). Согласно [14], такие токи описываются квадратичным законом Мотта:

$$J = \frac{9}{8} \tau_\mu \sigma_0 \mu \frac{U^2}{L^3}, \quad (5)$$

где τ_μ — максвелловское время релаксации, σ_0 — удельная электропроводность в объеме материала в отсутствие инжекции, μ — подвижность носителей заряда, U — приложенное напряжение, L — толщина образца.

На основе вольт-амперной характеристики для образца №1 сделано предположение о преобладающих механизмах проводимости для каждого интервала полей, соответствующих определенным участкам ВАХ. На участке от -5 до -3 В преобладают токи, ограниченные пространственным зарядом, интервал от -3 до -1 В графически удовлетворяет механизмам Пула–Френкеля и Шоттки. В связи с этим был произведен расчет величины оптической (высокочастотной) диэлектрической проницаемости, из которой можно получить показатель

преломления $n = \sqrt{\epsilon_{\infty}}$. Расчеты дали следующие значения: для эффекта Пула–Френкеля $n = 2.9$, для эффекта Шоттки $n = 1.36$. К табличному значению показателя преломления ниобата лития ($n = 2.29$) ближе значение, полученное при расчете для эффекта Пула–Френкеля. Таким образом, на участке напряжений от -3 до -1 V доминирующим является эффект Пула–Френкеля. При напряжениях от -1 до 1 V доминирующий механизм проводимости не выявлен. В интервале от 1 до 5 V основным механизмом проводимости является ТОПЗ.

Для образца №2 на участке от -0.5 до 0.5 V доминирующим является омический механизм проводимости. В интервалах приложенного напряжения от -5 до -2 V и от 0.5 до 5 V преобладающим механизмом проводимости являются токи, ограниченные пространственным зарядом. Область приложенных напряжений от -2 до -0.5 V определена как переходная, где преобладающий механизм проводимости на данный момент не установлен.

Были исследованы и проанализированы вольт-фарадные и вольт-амперные характеристики тонкопленочных структур ниобата лития, изготовленных различными методами. В ходе исследования установлена величина потенциального барьера, возникающего на интерфейсе Si–LiNbO₃. Для образца, изготовленного методом лазерной абляции, она составила около 2 eV, а для образца, изготовленного методом магнетронного распыления, — около 0.5 eV. По вольт-амперным характеристикам установлены доминирующие при различных значениях напряжения механизмы проводимости. Для образца, изготовленного методом лазерной абляции, доминирующими являются эффект Пула–Френкеля и токи, ограниченные пространственным зарядом, а для тонкопленочной структуры, произведенной методом магнетронного распыления, — токи, ограниченные пространственным зарядом.

Авторы выражают глубокую благодарность Д.А. Киселеву (НИТУ „МИСиС“) за любезно предоставленные для исследований образцы пленок ниобата лития.

Список литературы

- [1] Ю.С. Кузьминов. Электрооптический и нелинейно-оптический кристалл ниобата лития. Наука, М. (1987). 264 с.
- [2] Н.В. Сидоров, Т.Р. Волк, Б.Н. Маврин, В.Т. Калинин. Ниобат лития: дефекты, фоторефракция, колебательный спектр, поляритоны. Наука, М. (2003). 255 с.
- [3] Piezoelectric MEMS Resonators / ed. by Harmeet Bhugra and Gianluca Piazza. Springer International Publishing, Switzerland. (2017). 424 p.
- [4] L. Cai, Y. Wang, H. Hu. Optics Lett. **40**, 3013 (2015).
- [5] L. Cai, S. Li, H. Han, H. Hu. Optics Express **23**, 1240 (2015).
- [6] R. Bhatt, I. Bhaumik, S. Ganesamoorthy, R. Bright, M. Soharab, A. Kumar Karnal, P. Kumar Gupta. Crystals **7**, 23 (2017).
- [7] Д.А. Киселев, Р.Н. Жуков, А.С. Быков, М.И. Воронова, К.Д. Щербачев, М.Д. Малинкович, Ю.Н. Пархоменко. Неорган. материалы **50**, 453 (2014).
- [8] С.В. Евдокимов, А.В. Яценко. ФТТ **48**, 317 (2006).
- [9] Э.Х. Родерик. Контакты металл-полупроводник. Радио и связь, М. (1982). 208 с.
- [10] В.Н. Park, S.J. Hyun, C.R. Moon, Byung-Doo Choe, J. Lee, C.Y. Kim, W. Jo, T.W. Noh. J. Appl. Phys. **84**, 4428 (1998).
- [11] M. Maletto, E. Pevtsov, A. Sigov, A. Svtina. Integrated Ferroelectrics: J. **43**, 65 (2002).
- [12] К.Л. Чопра. Электрические явления в тонких пленках / Пер. с англ. А.Ф. Волкова, Е.И. Гиваргизова, П.И. Перова, В.И. Покалякина, под ред. проф. Т.Д. Шермергора. Мир, М. (1972). 424 с.
- [13] В.И. Фистуль. Введение в физику полупроводников. Высш. школа, М. (1984). 352 с.
- [14] В.Л. Бонч-Бруевич, С.Г. Калашников. Физика полупроводников. Наука, М. (1990). 672 с.