

## 06 Электропроводность структур металл–диэлектрик–полупроводник на основе сегнетоэлектрических пленок

© М.С. Афанасьев<sup>1</sup>, Е.И. Гольдман<sup>1</sup>, Г.В. Чучева<sup>1,¶</sup>, А.Э. Набиев<sup>2</sup>, Дж.И. Гусейнов<sup>2</sup>, Н.Ш. Алиев<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН  
Фрязино, Россия

<sup>2</sup> Азербайджанский государственный педагогический университет,  
Баку, Азербайджан

<sup>3</sup> Институт радиационных проблем НАН Азербайджана,  
Баку, Азербайджан

¶ E-mail: gvc@ms.ire.rssi.ru

Поступила в Редакцию 19 августа 2019 г.

В окончательной редакции 19 августа 2019 г.

Принята к публикации 19 августа 2019 г.

Приводятся результаты экспериментальных исследований частотных и температурных зависимостей электропроводности структур металл–диэлектрик–полупроводник на основе сегнетоэлектрических пленок состава  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ . Установлено, что в температурном интервале 290–400 К в диапазоне частот 25–10<sup>6</sup> Hz проводимость подчиняется закону  $\sigma \propto f^{0.76}$ , характерному для прыжкового механизма переноса заряда по локализованным вблизи уровня ферми-состояниям. Оценены плотность этих состояний, среднее расстояние и время прыжков.

**Ключевые слова:** структуры металл–диэлектрик–полупроводник, сегнетоэлектрические пленки, твердые растворы титаната бария–стронция, проводимость по переменному току.

DOI: 10.21883/FTT.2020.01.48748.570

### 1. Введение

В настоящее время наблюдается бурный рост числа теоретических и экспериментальных исследований в области устройств СВЧ. Имеет место как модернизация и расширение применения ранее известных устройств с увеличением рабочих частот, так и внедрение новых устройств на основе достижений физики твердого тела и прогрессивной технологии. Одно из приоритетных направлений развития устройств СВЧ и элементов энергонезависимой памяти — это использование структур металл–диэлектрик–полупроводник (МДП) с сегнетоэлектрическими пленками в качестве изолирующих слоев [1]. Уникальные физические свойства сегнетоэлектрических материалов (в частности, высокая диэлектрическая проницаемость, изменяемая под действием внешнего электрического поля) позволяют создавать на основе МДП-структур фактически новый класс устройств хранения и обработки информации [2]. Энергонезависимые элементы памяти на основе сегнетоэлектрических материалов характеризуются низкими токами потребления, большим числом циклов записи, длительным временем и высокой надежностью хранения данных при воздействии внешних факторов. Перспективным видом сегнетокерамики для применения в СВЧ технике являются твердые растворы титаната бария–стронция ( $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  или BSTO). В настоящее время BSTO керамика успешно используется в ускорительной технике: фазовращатели и переключатели большой мощности для схем питания линейных ускорителей, управ-

ляемые ускорительные структуры с диэлектрическим заполнением. Твердые растворы  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  обладают сегнетоэлектрическими свойствами при комнатной температуре, и диэлектрическая постоянная тонких пленок, в отличие от объемного материала, остается достаточно высокой и практически неизменной в широком диапазоне температур. Среди твердых растворов BSTO состав  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  отличается наименьшим размытием структурного фазового перехода, что делает его наиболее удобным материалом для промышленного производства конденсаторов интегральных микросхем и другой микро- и наносистемной техники.

Исследования электронных свойств сегнетоэлектрических пленок занимают в последние десятилетия одно из центральных мест в физике конденсированного состояния вещества. Изучение свойств керамики BSTO с целью совершенствования технологии изготовления материала с заданными характеристиками структур на его основе является весьма актуальной физической задачей. В работе [1] исследовалось влияние размера зерна на диэлектрические и сегнетоэлектрические свойства  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ . Перестройка поляризации и других свойств сегнетоэлектрической керамики BSTO при изменении внешнего поля были количественно изучены с помощью микроволновых измерений [3]. Несмотря на то, что BSTO, благодаря своим уникальным свойствам, уже давно находит применение при создании носителей оптической информации, элементов фотонных технологий и радиоэлектроники [1], механизмы электропроводности в этом высокоомном материале детально не ис-

следованы. Настоящая работа посвящена изучению процессов переноса заряда в сегнетоэлектрической пленке  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  в переменном электрическом поле.

## 2. Материалы и методики эксперимента

Для проведения исследований были изготовлены структуры металл–диэлектрик–полупроводник (МДП), представляющие собой кремниевую подложку, сегнетоэлектрическую пленку состава  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  и верхний электрод из никеля. Сегнетоэлектрический слой выращен методом высокочастотного реактивного распыления керамической мишени в атмосфере кислорода на установке ПЛАЗМА-50 СЭ по методике, представленной в работе [4]. Главная идея метода состоит в использовании низкотемпературной кислородной плазмы в качестве среды, где окислительный процесс при осаждении преобладает над восстановительным. Основным преимуществом метода является возможность напыления структурно-совершенных сегнетоэлектрических пленок с сохранением стехиометрии по кислороду. В качестве подложек использован кремний  $p$ -типа марки КДБ-20 с кристаллографической ориентацией [100]. Толщина подложек  $200 \pm 2 \mu\text{m}$ . Контакты формировались электроннолучевым методом через теньевую маску. В качестве материала омического контакта использовался никель. Площадь контактов составляла  $2.7 \cdot 10^{-4} \text{cm}^2$ , толщина  $0.1 \mu\text{m}$ .

Изучение электропроводящих свойств МДП-структур велось с помощью цифрового измерителя импеданса E7-20 в широком диапазоне частот ( $25\text{--}10^6 \text{Hz}$ ). Для опытов были изготовлены образцы из сегнетоэлектрических пленок  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  с толщиной  $310 \pm 20 \text{nm}$  на кремниевых подложках в виде плоских конденсаторов [5]. Измерения проводились при постоянном падении напряжения на образце 1 В.

## 3. Результаты и обсуждение

Рентгенодифракционное исследование показало, что для всех исследованных пленок наблюдалось параллельное расположение осей пленки и подложки в плоскости сопряжения, т.е.  $[100]\text{BSTO} \parallel [100]p\text{-Si}$ . На рис. 1 представлены температурные зависимости малосигнальной проводимости  $\sigma(T)$  сегнетоэлектрических пленок  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  при различных частотах. В диапазоне частот  $25\text{--}10^6 \text{Hz}$  график  $\lg \sigma - 10^3/T$  состоит из двух прямых с различными наклонами; из чего следует вывод, что электропроводность сегнетоэлектрических пленок  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  термоактивационным образом зависит от абсолютной температуры  $T$  [6]. По наклонам этих зависимостей определены энергии активации  $E$ , их значения уменьшаются с ростом частоты  $f$ : в низкотемпературной области — от 0.15 до 0.05 эВ, а в высокотемпературной от 0.75 до 0.35 эВ. Отметим,

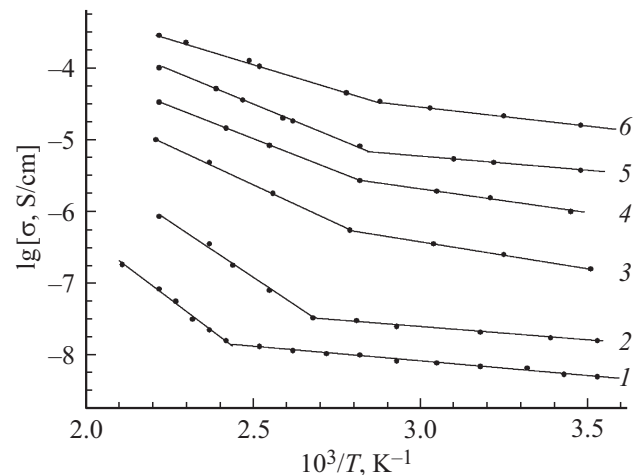


Рис. 1. Температурные зависимости электропроводности для структуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  при различных частотах: 1 — 25, 2 —  $10^2$ , 3 —  $10^3$ , 4 —  $10^4$ , 5 —  $10^5$ , 6 —  $10^6 \text{Hz}$ .

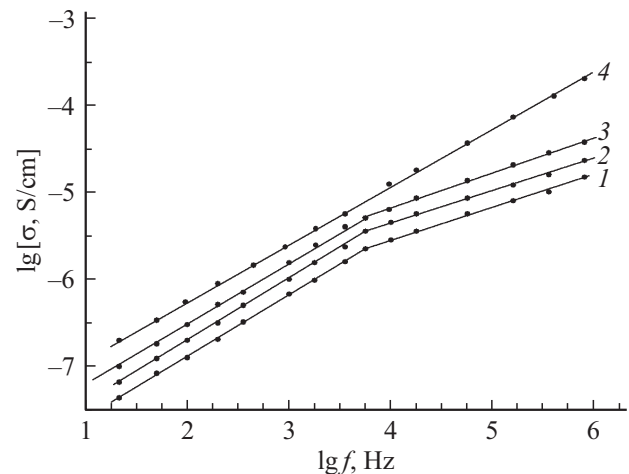


Рис. 2. Частотные зависимости электропроводности структуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  при различных температурах: 1 — 293, 2 — 373, 3 — 423, 4 — 453 К.

что активационный характер (с постоянной энергией активации) поведения  $\sigma$  вблизи комнатной температуры в диапазоне частот от  $10^4$  до  $10^6 \text{Hz}$  нельзя считать доказанным, поскольку в этом интервале недостаточно экспериментальных данных (всего по три измерения на каждой частоте). Частотную зависимость энергии активации можно объяснить прыжковым механизмом электропроводности [7]. Из графиков  $\sigma - f$  (см. рис. 2) следует, что экспериментальные данные хорошо описываются соотношением

$$\sigma = A f^s, \quad (1)$$

где  $A$  — постоянный коэффициент, характеризующий свойства исследованного образца, показатель степени  $s$  при частотах ниже  $10^4 \text{Hz}$  равен 0.76, а в диапазоне  $10^4 < f < 10^6 \text{Hz}$  уменьшается до 0.32. Отметим, что

частотная зависимость проводимости (1) характерна для прыжкового механизма электропереноса [7].

В работе [7] для проводимости  $\sigma$  получено выражение с неактивационным видом температурной зависимости:

$$\sigma(T) = \frac{\Omega}{T} \exp\left(\frac{T}{T_0}\right), \quad (2)$$

где  $T_0$  — характеристическая температура,  $\Omega$  — коэффициент пропорциональности. Согласно формуле (2), комбинация  $\ln(\sigma T)$  должна линейно зависеть от температуры. На рис. 3 приведена экспериментальная зависимость  $\ln(\sigma T) - T$  при разных частотах. Она оказывается прямолинейной, что противоречит активационному характеру, но подтверждает прыжковый механизм проводимости. В работах [8,9] для частотной зависимости прыжковой проводимости получено следующее выражение:

$$\sigma = \frac{\pi^4 e^2 k T N_F^2}{48 \alpha^5} f \left[ \ln\left(\frac{\nu_{ph}}{2\pi f}\right) \right]^4, \quad (3)$$

где  $N_F$  — плотность локализованных состояний вблизи уровня Ферми,  $k$  — постоянная Больцмана,  $\alpha$  — постоянная пространственного затухания локализованного состояния электронов (для волновой функции используется представление  $\Psi \propto e^{-\alpha r}$ ,  $r$  — расстояние от центра локализации до точки наблюдения),  $\nu_{ph}$  — фононная частота,  $e$  — элементарный заряд. Согласно выражению (3) проводимость зависит от частоты как  $f [\ln(\nu_{ph}/f)]^4$ , но при  $f \ll \nu_{ph}$  ( $\nu_{ph} \approx 10^{12}$  Hz) член в квадратных скобках хорошо аппроксимируется зависимостью  $f^{-0.2}$ , что практически приводит к совпадению экспериментальной зависимости (1) с соотношением (3). С помощью формулы (3) для значений  $\alpha = 1.5$  nm и  $\nu_{ph} = 10^{12}$  Hz из экспериментальной функции  $\sigma(f)$  была определена плотность состояний на уровне Ферми —  $N_F = 4.5 \cdot 10^{19} \text{ eV}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$ .

У ряда исследованных образцов температурные зависимости проводимости ниже 400 K спрямлялись в

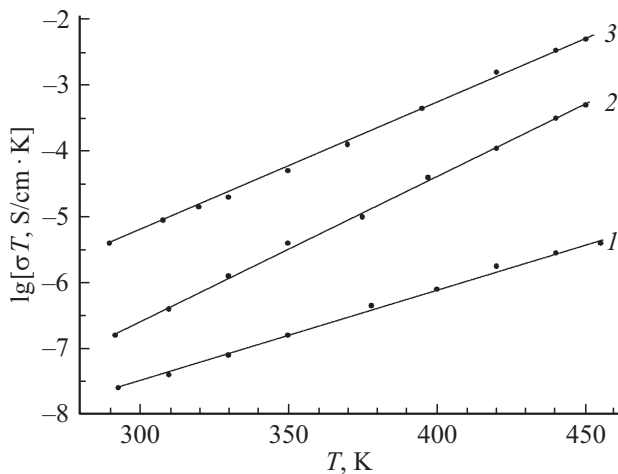


Рис. 3. Зависимость  $\ln(T\sigma) - T$  пленок  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  при: 1 —  $10^4$ , 2 —  $10^5$ , 3 —  $10^6$  Hz.

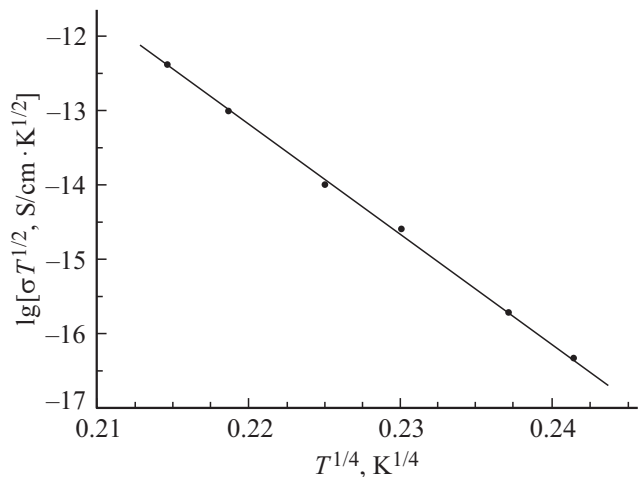


Рис. 4. Температурные зависимости электропроводности пленок  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  в координатах Мотта.

координатах Мотта  $\lg \sigma - (1/T)^n$  при  $n = 0.25$ . Это свидетельствует о проводимости с переменной длиной прыжка, которая описывается соотношением [10,11]:

$$\sigma(T) = \sigma_0 \exp\left[-\left(\frac{T_0}{T}\right)^n\right], \quad (4)$$

где  $\sigma_0$  — проводимость при  $T \rightarrow \infty$ ;  $T_0 = 16/N_F k \alpha^3$  — характерная температура;  $n$  — показатель, характеризующий механизм проводимости с переменной энергией активации ( $n = 0.25$  для механизма Мотта [7] и  $n = 0.5$  для механизма Шкловского–Эфроса [10]). Экспериментальная температурная зависимость проводимости слоя  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  при  $f = 10^4$  Hz представлена на рис. 4 и указывает на преобладание механизма Мотта. Согласно теории прыжковой проводимости на переменном токе среднее расстояние прыжков ( $R$ ) определяется по следующей формуле [8,9]:

$$R = \frac{1}{2\alpha} \ln\left(\frac{\nu_{ph}}{f}\right). \quad (5)$$

Для исследованных сегнетоэлектрических пленок значение  $R$  составило 10 nm. Связь между длиной и частотой прыжка задается выражением:

$$\tau^{-1} = \nu_{ph} \exp(-2\alpha R). \quad (6)$$

Откуда для среднего времени прыжков носителей заряда из одного локализованного состояния в другое получается:  $\tau = 10$  ns.

#### 4. Заключение

Анализ полученных результатов позволяет заключить, что в исследованной температурной области проводимость сегнетоэлектрических пленок  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  осуществляется в основном по прыжковому механизму.

Температурная и частотная зависимости электропроводности указывают на возможность реализации проводимости с переменной длиной прыжка по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми.

### Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] V.R. Mudinepalli, L. Feng, W.-C. Lin., B.S. Murty. *J. Adv. Ceram.* **4**, 46 (2015).
- [2] К.А. Воротилов, В.М. Мухортов, А.С. Сигов. Интегрированные сегнетоэлектрические устройства / Под ред. А.С. Сигова. Энергоатомиздат, М. (2011). 175 с.
- [3] T. Teranishi, T. Sogabe, H. Hayashi, A. Kishimoto, K. Fujimori. *Jpn. J. Appl. Phys.* **52**, 09KF06-1 (2013).
- [4] М.С. Афанасьев, А.И. Левашова, С.А. Левашов, В.Г. Нарышкина, Г.В. Чучева, А.Э. Набиев. *Соврем. информ. электрон. технологии* **2**, 128 (2014).
- [5] М.С. Афанасьев, А.Э. Набиев, Г.В. Чучева. *ФТТ* **57**, 1354 (2015).
- [6] Ю.М. Поплавко, Л.П. Переверзева, И.П. Раевский. *Физика активных диэлектриков*. Изд-во Южного федерального ун-та. Ростов н/Д. (2009). 479 с.
- [7] Н. Мотт, Э. Дэвис. *Электронные процессы в некристаллических веществах*. Мир, М. (1982). 664 с.
- [8] M. Pollak. *Philos Mag.* **23**, 519 (1971).
- [9] M. Pollak. Тр. VI междунар. конф. по аморфным и жидким полупроводникам. Ленинград (18–24 ноября 1975) Наука, Л. (1976). С. 79.
- [10] Б.И. Шкловский, А.Л. Эфрос. *Электронные свойства легированных полупроводников*. Наука, М. (1979). 416 с.
- [11] A.L. Efros, B.I. Shklovski. *Phys. Status Solidi B* **76**, 475 (1976).

Редактор К.В. Емцев