

Токи утечки в тонких сегнетоэлектрических пленках

© Ю.В. Подгорный, К.А. Воротилов, А.С. Сигов

Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики,
Москва, Россия

E-mail: podgsom_2004@mail.ru

Исследованы основные механизмы составляющих тока утечки тонких сегнетоэлектрических пленок цирконата-титаната свинца (ЦТС), сформированных золь-гель-методом. Определены характерные области вольт-амперных характеристик, в которых действуют различные механизмы переноса зарядов. Показано, что существует переходная область, разделяющая области, в одной из которых при низких напряжениях ток утечки зависит от свойств контакта электродов с пленкой ЦТС, а в другой ток утечки определяется собственными свойствами объема пленки ЦТС, а основным механизмом переноса зарядов является эмиссия Пула–Френкеля. В переходной области имеет место скачкообразное изменение тока, обусловленное релаксирующим пробоем барьера Шоттки. Определены временные зависимости токов утечки, при этом если до пробоя барьера Шоттки ток утечки уменьшается с увеличением времени задержки, то после пробоя характер этой зависимости изменяется на противоположный.

1. Введение

Сегнетоэлектрики используются в запоминающих устройствах в качестве конденсаторных диэлектриков, поэтому токи утечки и электрический пробой представляют потенциальные проблемы, которые необходимо решать с целью обеспечения требуемых эксплуатационных характеристик. Исследования вольт-амперных характеристик (ВАХ) позволяют получать информацию о механизмах переноса заряда в пленках цирконата-титаната свинца (ЦТС), а также судить об особенностях приэлектродного несегнетоэлектрического слоя.

Возможные механизмы проводимости в сегнетоэлектрических пленках (диэлектриках) — это эмиссии Шоттки и Пула–Френкеля, туннелирование Фаулера–Нордхейма, ток (как омический, так и ограниченный пространственным зарядом) и проводимость между границами зерен [1–3].

Задача настоящей работы — исследование механизмов проводимости в тонких сегнетоэлектрических пленках ЦТС, сформированных золь-гель-методом на кремниевых подложках с платиновыми электродами, в зависимости от времени воздействия и напряженности электрического поля.

2. Основные механизмы переноса носителей

За ток утечки при высоких полях в ЦТС-конденсаторах ответственны эмиссии Шоттки и Пула–Френкеля. При термоэлектронной эмиссии Шоттки носители преодолевают межфазный барьер благодаря тепловой активации, поэтому ток определяется состоянием поверхности раздела и зависит от температуры, приложенного поля и высоты барьера. При эмиссии Пула–Френкеля носители, захваченные на дефектных уровнях объема ЦТС, из запрещенной зоны эмитируют в зону проводимости при приложении поля, достаточного для изменения дефектного потенциала. Ток определяется распределением

дефектных уровней в объеме пленки и зависит от температуры и приложенного поля.

Тип проводимости объемной ЦТС-керамики определен как p -проводимость (следствие химических дефектов) при ширине запрещенной зоны от 3.2 до 3.9 eV (в зависимости от соотношения Zr/Ti) и электронном средстве $\chi = 3.5 \pm 0.2$ eV. Следовательно, поверхности раздела структуры металл–сегнетоэлектрик–металл тонкопленочного сегнетоэлектрического конденсатора представляют собой барьеры Шоттки [4–6]. Поэтому независимо от полярности ток утечки определяется током насыщения обратносмещенного диода, на котором до пробоя падает большая часть приложенного напряжения, т. е. в обедненном слое напряженность поля должна существенно превышать среднее поле в структуре металл–сегнетоэлектрик–металл. Ток насыщения барьера Шоттки

$$J_{\text{Sch}} = A_R T^2 \exp \left[\frac{-q}{k_B T} (\varphi_{Bp0} - \Delta\varphi_{\text{Sch}}) \right], \quad (1)$$

где A_R — постоянная Ричардсона, φ_{Bp0} — высота потенциального барьера без учета его понижения силами электрического изображения, $\Delta\varphi_{\text{Sch}}$ — понижение барьера эффектом Шоттки, q — единица заряда, k_B — постоянная Больцмана, T — температура [1,5]. Зависимости от температуры и электрического поля главным образом определяются параметрами φ_{Bp0} и диэлектрической проницаемостью сегнетоэлектрика в инфракрасной области ε_i . В общем случае высота барьера $q\varphi_{Bp0}$ систем металл–полупроводник определяется не только функцией работы выхода из металла, но и поверхностными состояниями D_{it}

$$\varphi_{Bp0} = c_2(\varphi_m - \chi) + (1 - c_2)(E_g/q - \varphi_0), \quad (2)$$

где φ_0 — уровень нейтральности (примерно 1.9 eV). Если $D_{it} \rightarrow \infty$, то параметр $c_2 \rightarrow 0$ и высота барьера не зависит от функции работы выхода металла и определяется только поверхностными свойствами полупровод-

ника. Для ЦТС с учетом $\varepsilon_i = 6.5$ значение c_2 составляет ~ 0.25 , что указывает на существенное влияние поверхностных состояний на потенциальный барьер [5].

Выражение для тока, обусловленного эмиссией Пула–Френкеля, подобно выражению для эмиссии Шоттки. Однако в данном случае глубина ловушки определяется глубиной потенциальной ямы φ_t , а не высотой энергетического барьера φ_{Bp0} на границе раздела, и понижение барьера оказывается в 2 раза больше, что обусловлено неподвижностью заряда ловушки [1]. Поскольку механизмы токов Шоттки (J_{Sch}) и Пула–Френкеля (J_{P-F}) похожи, для их идентификации используются различные методики [1–3]. Например вычисление ε_i по результатам экспериментального определения ВАХ. Значение ε_i для ЦТС должно находиться в пределах от 4.8 до 7.8.

1) Омический ток. Если количество акцепторов на поверхности так велико, что изгиб энергетических зон оказывается достаточно резким, обедненная область настолько утоньшается, что существенной становится полевая эмиссия [1,7]. В этом случае омический ток будет в основном определяться произведением подвижности носителей μ_p и их концентрации n : $J_{ohm} = q\mu_p n E$, где q — заряд электрона, E — напряженность электрического поля.

2) Ток, ограниченный пространственным зарядом (ТОПЗ). Объемный пространственный заряд, является результатом монополярной инжекции носителей в слаболегированный полупроводник или изолятор, в котором отсутствуют подвижные компенсирующие заряды противоположного знака. В этом случае при омическом контакте, если пренебречь захватом электронов на ловушки, ток должен иметь квадратичную зависимость от напряжения [1].

3) Ток смещения. При низких напряженностях поля (до 70–80 kV/cm) и при быстром изменении напряжения существенный вклад в суммарный ток может вносить поляризационная составляющая (ток смещения) [2].

4) Ионная проводимость. В общем случае постоянная составляющая ионной проводимости уменьшается с течением времени после начала воздействия электрического поля, поскольку ионы не могут легко инжектироваться в изолятор или экстрагироваться из него. После начала протекания тока положительные и отрицательные пространственные заряды собираются вблизи поверхностей раздела, вызывая искажение распределения потенциала. После снятия внешнего поля остается значительное внутреннее поле, которое вызывает частичный возврат ионов к их равновесному положению, что является причиной гистерезиса ВАХ.

3. Методика измерений и экспериментальные результаты

Измерения ВАХ осуществлялись при „лестничном“ изменении напряжения. Для исключения из измеряемого

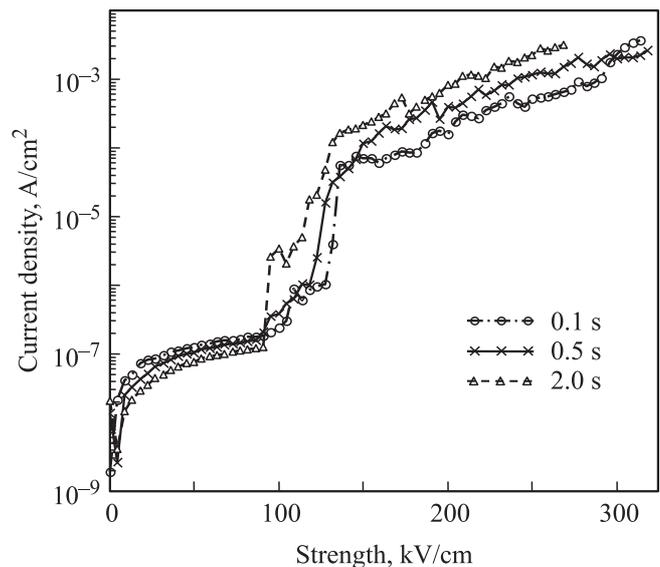


Рис. 1. Общий вид ВАХ сегнетоэлектрического конденсатора при различных временах задержки.

тока составляющей, обусловленной переключением поляризации, производилась предварительная поляризация пленок напряжением той же полярности. Ток измерялся спустя время задержки t_{delay} после очередного приращения напряжения на $\Delta U = 0, 07$ В.

Типичный вид ВАХ пленок ЦТС, полученных при трех значениях времени задержки (0.1, 0.5 и 2 с), представлен на рис. 1. Они имеют четыре четко различимые области. На участке до ~ 10 kV/cm ВАХ вносят спадающий характер, обусловленный током частичной деполяризации предварительно поляризованной пленки. Вторая область (в диапазоне полей от ~ 10 до 70–90 kV/cm), демонстрирует зависимость тока, близкую к линейной (ток, подобный омическому). В этой области все ВАХ имеют тенденцию к существенному уменьшению тока утечки с увеличением времени задержки. В третьей области (≥ 110 –130 kV/cm) наблюдается более сильная зависимость тока от электрического поля. Здесь, наоборот, ток утечки увеличивается с увеличением времени задержки. В четвертой, переходной между вторым и третьим диапазонами напряженности области имеет место релаксирующее скачкообразное возрастание тока, вероятной причиной которого является пробой обратносмещенного барьера Шоттки. После стабилизации пробоя величина тока, протекающего через ЦТС-конденсатор, определяется свойствами объема пленки ЦТС.

В области высоких полей (> 130 kV/cm) анализировалось наличие механизмов протекания тока, обусловленных эмиссиями Шоттки и Пула–Френкеля, а также ТОПЗ. Чтобы исключить разрушение пленки, обусловленное длительным воздействием сильных полей (> 120 kV/cm), анализировались ВАХ со временами задержки не более 2 с [8]. Экспериментальные данные изображались в координатах Шоттки $\ln(I) - E^{1/2}$,

Результаты аппроксимации ВАХ до пробоя барьера Шоттки (рис. 2), $A_S = 2.20 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2$

$t_{\text{delay}}, \text{ s}$	$U_{\text{min}}, \text{ V}$	$U_{\text{max}}, \text{ V}$	$\tau, \text{ s}$	$C_{\tau}, \text{ pF}$	$G, \text{ pS}$	$\rho, 10^{12} \Omega \cdot \text{ cm}$	СКО, pA	r
2	0.28	1.05	4.4	127	10.31	1.56	0.09	0.9997
5	0.28	1.26	8.1	78	5.75	2.80	0.13	0.9980
10	0.35	1.05	17	32	3.66	4.39	0.07	0.9973
20	0.14	1.26	26	66	2.26	7.12	0.05	0.9983

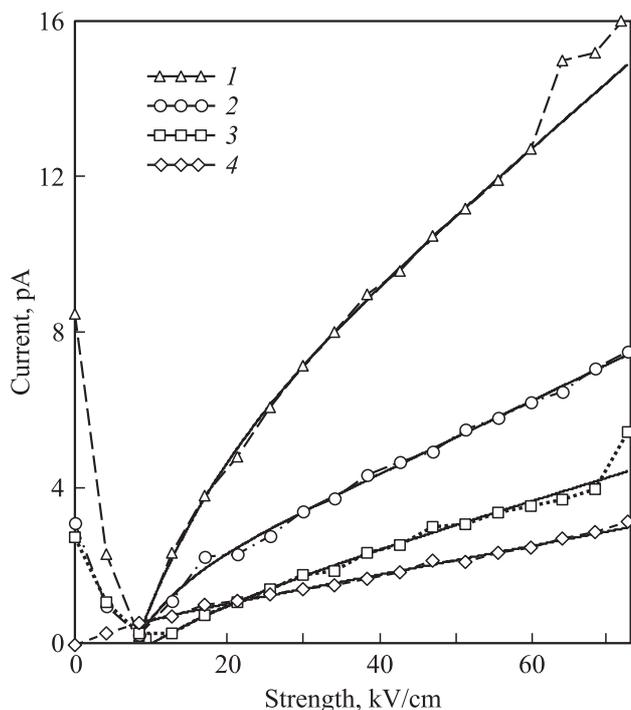


Рис. 2. ВАХ ЦТС-конденсатора до пробоя барьера Шоттки при напряженности электрического поля ниже 100 kV/cm и временах задержки 2 (1), 5 (2), 10 (3) и 20 с (4).

Пула–Френкеля $\ln(I/E) \sim E^{1/2}$ и ТОПЗ $\ln(I) - \ln(E)$. В области высоких напряженностей ($> 150 \text{ kV/cm}$) участки этих зависимостей имеют линейный характер. Для них методом линейной регрессии определялись коэффициенты наклона K_{Sch} , $K_{\text{P-F}}$ и K_{SCLC} соответствующих прямых. В координатах ТОПЗ значение K_{SCLC} оказалось > 4 , т.е. механизм ТОПЗ в данной области неприемлем. По коэффициентам K_{Sch} и $K_{\text{P-F}}$ рассчитывались значения оптической диэлектрической проницаемости пленки ЦТС по формуле

$$\varepsilon_i = \frac{1}{(k_B T)^2} \frac{q^3}{m \pi \varepsilon_0} \frac{1}{K^2}, \quad (3)$$

где коэффициент m для механизма Шоттки равен 4, а для механизма Пула–Френкеля — 1, K — соответствующий значениям m коэффициент наклона (K_{Sch} или $K_{\text{P-F}}$). Результаты расчета показали, что в области высоких полей основным механизмом переноса носителей является эмиссия Пула–Френкеля: $\varepsilon_i \approx 4$.

На рис. 2 показаны ВАХ до пробоя барьера Шоттки, измеренные при различных временах задержки. Здесь ток утечки моделировался суммой омической и поляризационной составляющих. При равномерном характере изменения напряжения доля тока поляризации в совокупном токе уменьшается, так как ток сквозной проводимости увеличивается пропорционально приложенному напряжению, а ток поляризации имеет тенденцию к насыщению и может быть представлен суммой членов убывающей геометрической прогрессии. По этой же причине доля тока поляризации уменьшается с увеличением времени задержки. Экспериментальные данные в области полей до $80\text{--}90 \text{ kV/cm}$ аппроксимировались следующей функцией:

$$I(k) = I_R(k) + I_C(k) = p_0(k + p_3) + p_1 \frac{(p_2)^{(k+p_3)} - 1}{p_2 - 1}, \quad (4)$$

где k — номер очередной ступеньки напряжения. В приведенном выражении первый член соответствует омической составляющей тока, а второй — току смещения. Коэффициенты p_i определяются методом нелинейной

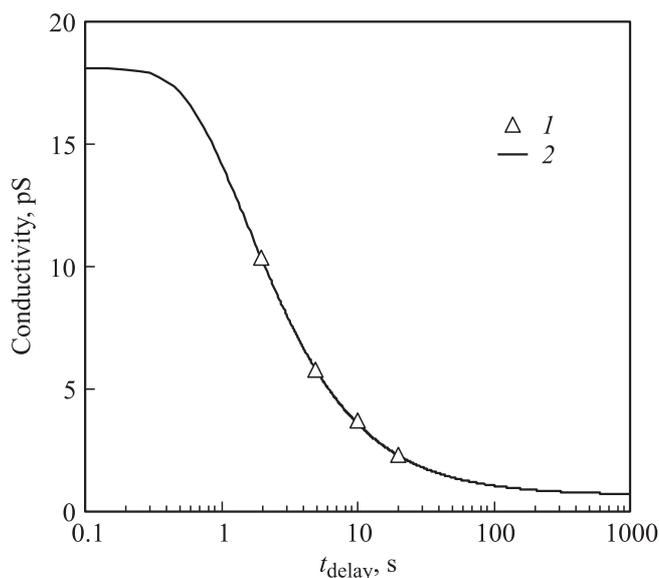


Рис. 3. Зависимость омической проводимости ЦТС-конденсатора от времени задержки t_{delay} при напряжениях до пробоя барьера Шоттки (1) и зависимость, аппроксимированная функцией Вейбулла (2).

регрессии. В таблице для ЦТС-конденсатора с площадью электрода A_S приведены рассчитанные по значениям p_i параметры, определяющие составляющие тока в области низких полей: G и ρ — омические проводимость и удельное сопротивление, C_τ и τ — параметры релаксации: емкость и время. Качество аппроксимации характеризуется коэффициентом корреляции r и средним квадратичным отклонением (СКО). На рис. 2 вместе с экспериментальными показаны соответствующие аппроксимирующие зависимости, иллюстрирующие адекватность предлагаемой модели и методики расчета ее параметров. Полученные результаты позволили установить, что зависимость тока (проводимости G) утечки от времени t (рис. 3) подчиняется модели Вейбулла: $G(t) = a - be^{-(ct)^d}$.

4. Заключение

Механизмы проводимости должны исследоваться как на основе ВАХ, так и на основе зависимостей тока утечки от времени воздействия постоянного напряжения.

Определены четыре характерные области ВАХ. В области высоких полей основным механизмом транспорта носителей является эмиссия Пула–Френкеля. В области низких полей транспорт носителей обусловлен током, подобным омическому, и током смещения (поляризации) с сильной временной зависимостью.

Список литературы

- [1] С. Зи. Физика полупроводниковых приборов. Мир, М. (1984). Т. 1. 456 с.
- [2] H.-M. Chen, S.-W. Tsaur, J.Y.-M. Lee. Jpn. J. Appl. Phys. **37**, 4056 (1998).
- [3] Ю.В. Подгорный, Д.С. Серегин, К.А. Воротилов. Материалы VII Междунар. НТК „Фундаментальные проблемы радиоэлектронного приборостроения“. Энергоатомиздат, М. (2010). Ч. I. С. 145.
- [4] L. Pintilie, M. Alexe. J. Appl. Phys. **98**, 124 103 (2005).
- [5] L. Pintilie, I. Vrejoiu, D. Hesse, M. Alexe. J. Appl. Phys. **104**, 114 101 (2008).
- [6] A.K. Tagantsev, G. Gerra. J. Appl. Phys. **100**, 051 607 (2006).
- [7] H. Hu, S.B. Krupanidhi. Mater. Res. Soc. **9**, 1484 (1994).
- [8] R. Waser, M. Klee. Integr. Ferroelectrics **2**, 257 (1992).