

05

## Распределение неравновесных носителей заряда в нелинейном тонкопленочном конденсаторе

© В.А. Вольпяс, А.Г. Гагарин, А.Б. Козырев, А.Г. Алтынников

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет (ЛЭТИ)

E-mail: mcl@eltech.ru

Поступило в Редакцию 14 февраля 2007 г.

Измерены и проанализированы процессы релаксации емкости нелинейного тонкопленочного BSTO конденсатора между стационарными состояниями, определяемыми различными значениями приложенного напряжения смещения. На основе предложенной методики измерения динамических вольт-фарадных характеристик получены оценки значений коэффициентов диффузии и подвижности неравновесных носителей электрического заряда и область их пространственной локализации.

PACS: 77.55.+f, 77.22.Ej, 77.80.Fm, 77.22.Jp

Серьезная проблема, которая возникает при проектировании СВЧ-устройств с сегнетоэлектрическими (СЭ) управляющими элементами, связана с гистерезисными явлениями, возникающими в пленке после прекращения воздействия внешнего электрического поля. Несмотря на быструю релаксацию „мягкой“ сегнетоэлектрической моды за время порядка  $10^{-11}$  s, восстановление диэлектрической проницаемости сегнетоэлектрической пленки до начального значения может продолжаться достаточно долгое время [1,2], что эквивалентно значительному снижению динамической управляемости пленок в режиме импульсного управления СВЧ-элементами. Считается, что причиной замедления релаксации диэлектрической проницаемости является внутреннее электрическое поле, возникающее в результате целого ряда процессов, происходящих на границе раздела с электродами конденсатора или в объеме СЭ-пленки после прекращения воздействия внешнего электрического поля.

В большинстве публикаций, посвященных данному вопросу, рассматривается ряд механизмов уменьшения остаточной поляризации в

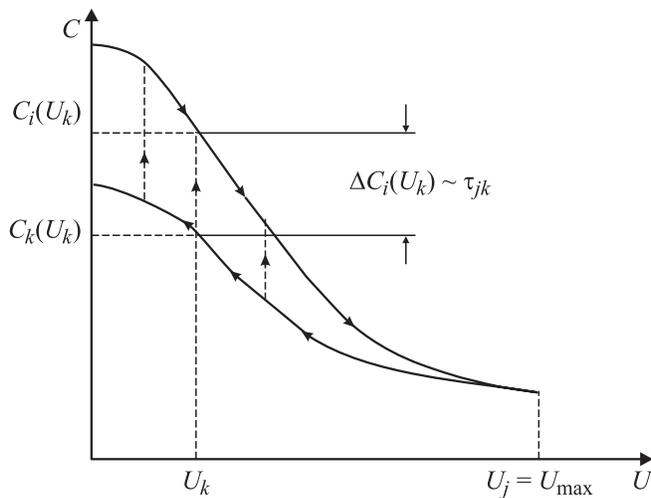
объемных монокристаллах и в тонких СЭ-пленках, находящихся в сегнетоэлектрической фазе [3,4]. Однако для применения в качестве основы для управляющих элементов СВЧ-техники наиболее перспективны тонкие сегнетоэлектрические пленки, находящиеся в параэлектрической фазе, обладающие высокой нелинейностью диэлектрической проницаемости и малыми СВЧ-диэлектрическими потерями.

Данная работа направлена на исследование процессов релаксации емкости металл-диэлектрик-металл (МДМ) конденсаторов на основе тонких СЭ-пленок  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  (BSTO), представляющих собой трехслойную структуру (Pt/BSTO/Cu). Толщина BSTO пленки составляла 300 nm, толщина нижнего (Pt) и верхнего (Cu) электродов — 0.1 и 2  $\mu\text{m}$  соответственно, с зоной перекрытия электродов площадью  $4 \times 10 \mu\text{m}^2$ . СЭ пленки были осаждены на подложке  $\text{Al}_2\text{O}_3$  методом ВЧ магнетронного распыления [5].

Основу методики исследования процессов релаксации составляли измерения емкости конденсатора  $C(t)$  при изменении внешнего постоянного напряжения. Автоматизированный измерительный комплекс был составлен из RLC-метра E7-12 (частота измерительного сигнала 1 MHz, амплитуда измерительного сигнала 200 mV) и источника напряжения, сопряженных с ЭВМ, которая формировала управляющий импульс, подаваемый на вход усилителя напряжения, и через равные интервалы времени ( $\Delta t = 0.5$  s) считывала с RLC-метра величину емкости конденсатора. Погрешность измерения емкости не превышала 0.001 pF.

Алгоритм исследований заключался в измерении емкости конденсатора при дискретном изменении напряжения смещения  $U$ . Максимальное значение напряжения  $U_{\text{max}}$  определялось из условия  $dC/dU(U = U_{\text{max}}) \approx 0$ . В начальной фазе эксперимента напряжение  $U$  дискретно увеличивалось от 0 до  $U_{\text{max}}$ , при этом массив задаваемых значений напряжения  $U_i$  и соответствующих ему измеренных значений емкости  $C(U_i)$  заносился в память ЭВМ. Далее задавался ряд постоянных, дискретно уменьшающихся промежуточных значений напряжения  $U_k$ , и для каждого из этих значений измерялось соответствующее время релаксации емкости  $\Delta C(U_k)$  (рис. 1) (время релаксации остаточной емкости  $\Delta C(U_k)$  определялось как время возврата значения емкости  $C(U_k)$  к своему начальному значению  $C(U_i)$  при  $U_k = U_i$ ). Каждому дискретно уменьшающемуся промежуточному значению напряжения  $U_k$  соответствовало одно и то же начальное значение напряжения  $U_{\text{max}}$ .

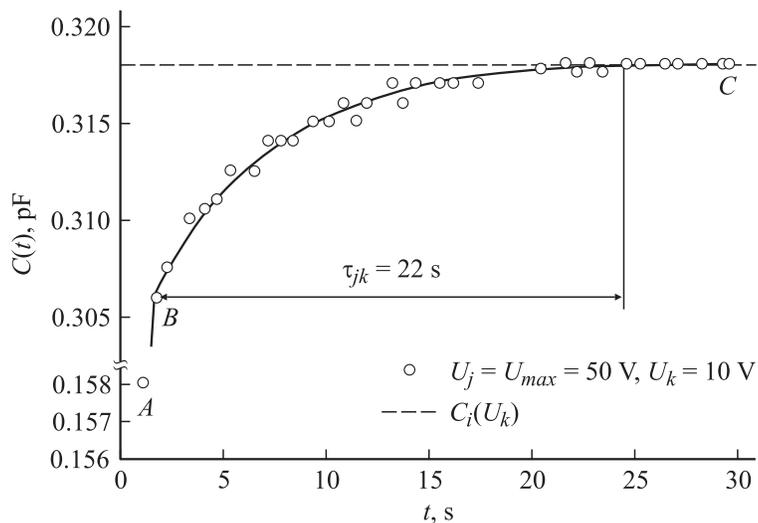
На рис. 2 в качестве примера представлена экспериментальная зависимость изменения во времени величины емкости  $C(t)$  исследуемого



**Рис. 1.** Алгоритм измерения динамических вольт-фарадных характеристик сегнетоэлектрического конденсатора.

СЭ конденсатора при дискретном изменении внешнего напряжения  $U$  от начального значения  $U_{\max} = 50 \text{ V}$  до конечного значения  $U_k = 10 \text{ V}$ . На зависимости емкости  $C(t)$  при изменении напряжения наблюдаются области „быстрой“ ( $A-B$ ) и „медленной“ ( $B-C$ ) релаксации емкости. Области „быстрой“ релаксации соответствует изменение емкости  $\Delta C(U_k)$  около 0.8 от начального значения  $C(U_i)$  с характерным временем менее  $10 \text{ ns}$  [6], измерение которого невозможно в рамках проведенного эксперимента, направленного на исследование процессов „медленной“ релаксации. Видно, что при изменении напряжения от начального  $U_{\max} = 50 \text{ V}$  до конечного  $U_k = 10 \text{ V}$  время „медленной“ релаксации составляет  $\tau = 22 \text{ s}$ . Аналогичная обработка остальных зависимостей емкости  $\Delta C(t)$ , приведенных на рис. 1, при изменении напряжения от начального значения  $U_{\max} = 50 \text{ V}$  до различных значений  $U_k = 20, 30$  и  $40 \text{ V}$  позволила получить соответствующие значения времен „медленной“ релаксации  $\tau = 15, 9$  и  $6 \text{ s}$ .

Для интерпретации экспериментальных результатов была предложена модель пространственного перераспределения объемного заряда при изменении воздействия электрического поля. При подключе-



**Рис. 2.** Экспериментальная зависимость релаксации емкости  $C(t)$  при изменении внешнего напряжения смещения.

нии к МДМ-конденсатору постоянного напряжения в объеме тонкой СЭ-пленки устанавливается стационарное распределение зарядов. При уменьшении внешнего поля возникает неравновесное распределение подвижных носителей заряда, движение которых и определяет характерные для BSTO-пленок времена релаксации внутреннего электрического поля.

В приближении отсутствия процессов генерации и рекомбинации носителей заряда их стационарное распределение устанавливается в случае равенства потоков — диффузионного и дрейфового. Если к конденсатору, находящемуся в стационарном состоянии при напряжении  $U_j$ , приложить меньшее напряжение  $U_k = U_j - \Delta U_k$ , произойдет рассогласование диффузионного и дрейфового потоков подвижных носителей заряда. Возникшее неравновесное состояние за некоторое время  $\tau_{jk}$  вновь перейдет в стационарное при напряжении  $U_k$ . Время релаксации  $\tau_{jk}$  между стационарными состояниями с концентрациями  $n_j(x)$  и  $n_k(x)$  соответственно будет определяться в основном диффузионным движением носителей заряда. В начальном стационарном

состоянии с концентрацией  $n_j(x)$  и максимальным значением напряжения  $U_j = U_{\max}$ , которое определялось из условия  $dC/dU(U = U_{\max}) \approx 0$ , неравновесные носители заряда наиболее интенсивно локализируются в приэлектродной области пленки. Для установившегося за время релаксации  $\tau_{jk}$  конечного стационарного состояния с меньшим значением напряжения  $U_k$  и концентрацией  $n_k(x)$  решение уравнения диффузии для ограниченного по мощности источника неравновесных носителей заряда при начальном условии  $n_k(x, t = 0) = n_j(x)$  имеет вид

$$n_k(x) = n_j(x) \exp\left[-\frac{x^2}{4D\tau_{jk}}\right], \quad (1)$$

где  $D$  — коэффициент диффузии,  $x$  — расстояние, направленное в глубину пленки по нормали к ее поверхности. Известно, что носители заряда, находящиеся в поле с разностью потенциалов  $\Delta U_{jk}$ , имеют распределение по энергиям

$$n_k = n_j \exp\left[-\frac{e\Delta U_{jk}}{kT}\right]. \quad (2)$$

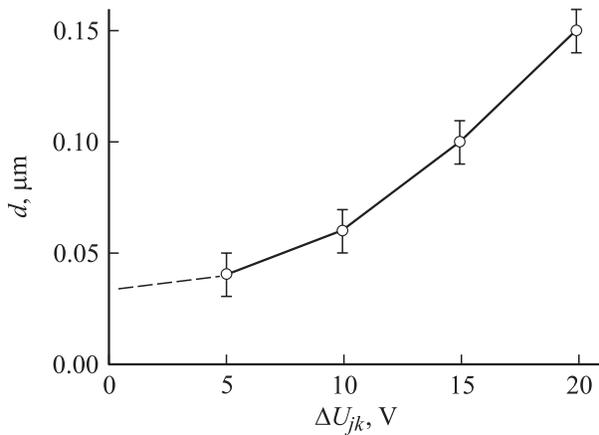
Воспользовавшись соотношением Эйнштейна ( $D = \mu kT/e$ ), которое связывает описание трех видов движения носителей заряда — диффузионного ( $D$ ), дрейфового ( $\mu$ ) и хаотичного ( $T$ ), выражение (2) может быть записано в виде:

$$n_k = n_j \exp\left[-\frac{\mu}{D} \Delta U_{jk}\right]. \quad (3)$$

Приравняв показатели экспонент из выражения (3) и (1), можно получить выражения для количественной оценки коэффициентов подвижности  $\mu$  и диффузии  $D$ :

$$\mu = \frac{x_k^2}{4\Delta U_{jk}\tau_{jk}}, \quad D = \frac{kT}{4e} \frac{x_k^2}{\Delta U_{jk}\tau_{jk}}. \quad (4)$$

Используя выражение (4) для заданного изменения напряжения  $\Delta U_{jk}$  и соответствующего ему измеренного времени релаксации  $\tau_{jk}$ , можно оценить значения  $\mu$  и  $D$  для неравновесных носителей заряда в пленке BSTO. Очевидно, что величина области пространственного распределения носителей заряда  $d$  для конечного стационарного состояния



**Рис. 3.** Зависимость величины области пространственного распределения неравновесных носителей заряда при изменении внешнего напряжения смещения.

с глубиной диффузии  $x_k$  заведомо не превышает половины толщины пленки  $h/2$ , и соответственно напряжение, приложенное к этой области, не превышает величину  $U/2$ . В этом случае выражения (4) принимают вид

$$D = \frac{kT}{8e} \frac{h^2}{(U_j - U_k)\tau_{jk}}, \quad \mu = \frac{h^2}{8(U_j - U_k)\tau_{jk}}. \quad (5)$$

По результатам экспериментального исследования СЭ конденсаторов при температуре  $T = 300 \text{ K}$  были получены количественные оценки коэффициентов  $D$  и  $\mu$  носителей заряда в СЭ-пленке BSTO:  $D \approx 0.3 \cdot 10^{-18} \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $\mu \approx 0.1 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ .

Анализ приведенных результатов эксперимента показывает, что при заданном начальном значении  $U_j = 50 \text{ V}$  уменьшение конечных величин  $U_k$  от 40 до 10 V приводит к непропорциональному увеличению времени  $\tau_{jk}$  между соответствующими стационарными состояниями и к различным значениям коэффициента диффузии  $D$ . Можно предположить, что если ранее, при оценке величины области пространственного распределения носителей заряда  $d$ , ее максимальное значение принималось равным  $h/2$ , то уменьшение разности напряжений  $\Delta U_{jk}$  должно приводить к уменьшению величины  $d$ . Принимая в качестве

значения  $D$  полученную оценку  $D^*$  при  $\Delta U_{jk} = 40 \text{ V}$  и  $\tau_{jk} = 22 \text{ s}$ , которой сопоставлялось наибольшее значение  $d = h/2$ , можно определить значения  $d_k$  для всех исследованных нами промежуточных стационарных состояний ( $k = 1 \dots 4$ ):

$$d_k = \left[ \frac{8e}{kT} D^* (U_{\max} - U_k) \tau_k \right]^{1/2}.$$

Результаты проведенной итерационной процедуры приведены на рис. 3. Экстраполяция полученной зависимости до  $\Delta U_{jk} = 0$  показывает, что при значении напряжения  $U = 50 \text{ V}$  пространственная область локализации неравновесных носителей заряда может достигать величины  $d \approx 0.03 \mu\text{m}$ .

Таким образом, причиной образования в СЭ пленках внутреннего электрического поля может являться объемный заряд, значение и распределение которого изменяются при изменении напряжения за счет самосогласованного движения неосновных носителей заряда, определяющегося диффузией и дрейфом носителей в пленке. Полученные оценки значений коэффициентов диффузии и подвижности неосновных носителей заряда соответствуют движению кислородных вакансий в пленке BSTO.

Работа выполнена в рамках проекта РНП 2.1.2.7083 ФАО РФ.

## Список литературы

- [1] Гольцман Б.М., Леманов В.В., Дедык А.И., Карманенко С.Ф., Тер-Мартirosян Л.Т. // Письма в ЖТФ. 1997. Т. 23. В. 15. С. 46–52.
- [2] Voikov Yu.A., Goltsman B.M., Yarmarkin V.K., Lemanov V.V. // Appl. Phys. Lett. 2001. V. 78. P. 3866.
- [3] Jin H.Z., Jing Zhu. // J. of Appl. Phys. 2002. V. 92. P. 4594.
- [4] Dawber M., Rabe K.M., Scott J.F. // Rev. of Mod. Phys. 2005. V. 77. P. 1083–1130.
- [5] Razumov S.V., Tumarkin A.V., Gaidukov M.M. et al. // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 81. N 9. P. 1675–1677.
- [6] Козырев А.Б., Солдатенков О.И., Иванов А.В. // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 24. Вып. 19. С. 19–25.