

УДК 537.226

ИССЛЕДОВАНИЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПРОБОЯ НЕКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО ОКИСЛА ТАНТАЛА

В. А. Лалэко, Т. В. Шмидт

Представлены результаты исследования электрического пробоя анодного окисла тантала в постоянном поле. Определены статистические параметры пробоя и их зависимость от величины и полярности приложенного напряжения и температуры образца. Получены полевые и температурные зависимости времени запаздывания пробоя τ в диапазоне времен 10^{-6} — 10^2 с. Показано, что экспериментальные зависимости $\tau(E)$ спрямляются в координатах $\lg \tau \div E^{-1}$. Определена зависимость энергии активации процесса пробоя от величины электрического поля. Проведено сопоставление некоторых моделей пробоя с экспериментальными результатами.

Некристаллический окисел тантала Ta_2O_5 , полученный анодным окислением тантала в электролите, широко используется как диэлектрик в конденсаторах с оксидной изоляцией [1], в МДП структурах и элементах памяти [2]. В то же время поведение Ta_2O_5 в сильных постоянных и импульсных полях изучено явно недостаточно. Автор [3] получил линейную зависимость $\ln \tau$ от \sqrt{E} и предположил, что электрический пробой обусловлен инжекцией электронов из катода путем термоэлектронной эмиссии и последующим лавинным размножением их в диэлектрике. В [4] предлагался ионный механизм пробоя. В [5, 6] сообщалось о наличии деградации Ta_2O_5 в предпробивных полях, а спрямление зависимости $\tau(E)$ в координатах $\ln \tau \div E$ объяснялось совокупностью электронных и ионных процессов. Авторы [7] для объяснения линейной зависимости $\ln \tau$ от \sqrt{E} привлекли термофлуктуационную модель, широко применяемую при анализе механической прочности твердых тел [8].

Однако в [3, 8, 9] диапазон измеряемых на опыте времен τ в среднем не превышал четырех порядков, что недостаточно для однозначного определения вида зависимости $\tau(E)$ (в силу ее большой крутизны), на основании которой можно судить о наличии того или иного механизма пробоя.

В настоящей работе приводятся результаты исследования времени запаздывания пробоя Ta_2O_5 при импульсном приложении сильного электрического поля. Диапазон измеряемых времен расширен до 8 порядков (10^{-6} — 10^2 с), что позволяет установить вид полевой и температурной зависимостей τ и провести критический анализ возможности использования некоторых моделей пробоя для объяснения экспериментальных результатов.

1. Методы исследования

Окисные пленки на тантале были получены электрохимическим окислением тантала в слабом водном растворе ортофосфорной кислоты. Детали приготовления образцов описаны в [5, 6, 9]. Толщина окисного слоя 190 нм. В качестве контакта использовался прижимной электрод, изготовленный из тонкой $\sim 0,2$ мм платиновой проволоки. Применение такого электрода позволяет на площади окисла ~ 1 см² провести до 10^4 пробоев отдельных участков окисла и, таким образом, исследовать и полевую, и температурную зависимости τ на одном образце. Маленькая площадь контакта, кроме

того, уменьшает вероятность попадания под электрод дефектного участка и позволяет исследовать пробы однородной («бездефектной») части диэлектрика. Такой метод исследования электрической прочности тонких диэлектриков был предложен в [10] и широко использовался автором [11].

Испытания проводились в статическом режиме. В этом случае время запаздывания пробоя τ — это промежуток времени от момента приложения прямоугольного импульса напряжения до момента срыва напряжения на образце при пробое. Для определения величины τ в диапазоне 10^{-6} — 10^3 с использовался частотомер ЧЗ-34 в режиме измерения длительности импульсов. Импульс напряжения формировался с помощью изготовленного электронного усилителя, имеющего следующие параметры: амплитуда выходного напряжения 0—300 В, крутизна переднего фронта $\sim 10^8$ В·с⁻¹. Температура образца поддерживалась постоянной в диапазоне от комнатной до 416 К электронным терморегулятором. Измерения проводились в атмосфере лаборатории. Для получения каждого значения τ проводилось до 150 пробоев в заданных условиях с их последующей статистической обработкой на ЭВМ.

2. Результаты эксперимента и их обсуждение

Наиболее широко для статистической обработки результатов по исследованию механической и электрической прочности диэлектриков применяется распределение Вейбулла [12]. В этом случае функция распределения $P_s(\tau)$ времен запаздывания пробоя τ , имеющих статистический разброс, описывается выражением

$$P_s(\tau) = 1 - \exp[-C\tau^a E^b], \quad (1)$$

где C , a , b — параметры, определенные опытным путем. Если экспериментальные результаты подчиняются уравнению (1), то в координатах Вейбулла

$$y \equiv \lg\{-\ln[1 - P_s(\tau)]\} \div \lg \tau \quad (2)$$

должна получаться прямая линия, наклон которой дает величину параметра a в (1), определяющего «ширину» получаемого распределения времен τ . В [13] показано, что распределение экстремальных значений [14] при чисто формальной замене τ на $\lg \tau$ переходит в распределение Вейбулла. В этом случае оба распределения будут иметь одинаковые «характерные» координаты (2).

На рис. 1 приведены в этих координатах функции распределения $P_s(\tau)$, полученные для обеих полярностей приложенного к сэндвич-структуре Ta—Ta₂O₅—Pt напряжения и нескольких значений напряжения и температуры. Экспериментальные точки достаточно хорошо ложатся на прямые линии, что говорит о правомерности использования распределения Вейбулла для τ (или распределения экстремальных значений для $\lg \tau$). Значения параметра a не зависят от величины приложенного напряжения и температуры измерений, но зависят от полярности напряжения. Для отрицательной полярности тантала (Ta⁻) $a^- = 0.60$, а для Ta⁺ $a^+ = 0.48$. Заметим, что распределения времен запаздывания пробоя для Ta₂O₅ получаются достаточно широкими. Так, интервал $P_s(\tau)$ от 10 до 90 % занимает примерно две декады времен для Ta⁻ и три декады для Ta⁺. В то же время такие широкие распределения τ обусловлены «собственными» свойствами системы Ta—Ta₂O₅, а не погрешностями в применяемой методике. В последнем случае (а также при наличии в исследуемой системе большого числа слабых мест [15]) обычно наблюдается излом на зависимости $y(\lg \tau)$ за счет появления длинного «хвоста» в области малых времен. Такой результат действительно получается либо при использовании напыленного электрода (за счет его большей площади), либо при неучете электроэрозии прижимного электрода при пробое. Кроме того, для системы Al—Al₂O₃ значения параметра $a = 1.0 \div 1.3$, полученные нами с применением той же самой методики, хорошо совпадают с литературными данными [12].

Каждая экспериментальная точка на дальнейших графиках получена путем усреднения 100—150 значений $\lg \tau$, что формально соответствует применению статистики экстремальных значений (для $\lg \tau$).

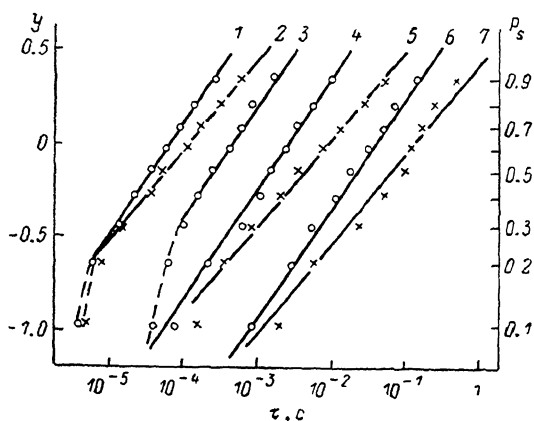


Рис. 1. Функции распределения времен запаздывания пробоя $P_s(\tau)$ для оксида тантала в координатах Вейбулла $y = \lg \{-\ln [1 - P_s(\tau)]\} \div \lg \tau$ для отрицательной (1, 3, 4, 6) и положительной (2, 5, 7) полярности тантала.

$U, В$: 1 — 90; 2 — 120; 3 — 110; 4 — 80; 5 — 105; 6, 7 — 100. $T, К$: 1, 4 — 416; 2, 3, 5—293. Наклоны прямых 1, 3, 4, 6 — $\alpha = 0.60$; 2, 5, 7 — 0.48.

На рис. 2 приведены зависимости τ от напряжения в координатах $\lg \tau \div \sqrt{U}$ для обеих полярностей тантала при комнатной температуре и 416 К (для Ta^-). Эффект полярности незначителен ($\tau^+ \gg \tau^-$). Это справедливо для образцов, которые после окисления не проходили никаких

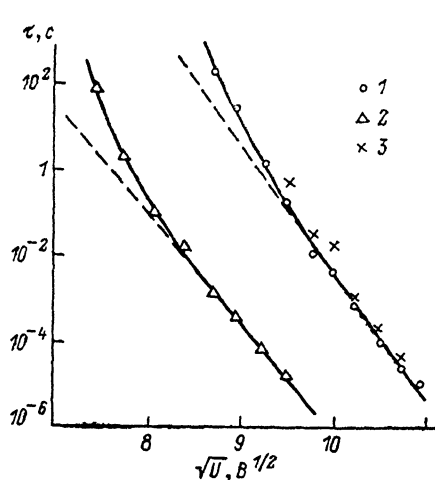


Рис. 2. Зависимости времени запаздывания пробоя τ от напряжения U в координатах $\lg \tau \div \sqrt{U}$ для отрицательной (1, 2) и положительной (3) полярности тантала.

$T, К$: 1, 3 — 293; 2 — 416.

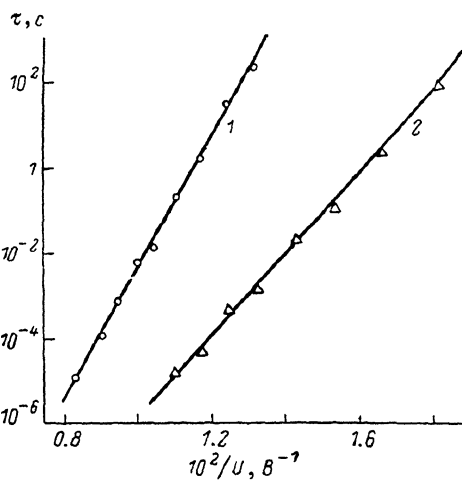


Рис. 3. Зависимости $\tau(U)$ для отрицательной полярности тантала, построенные в координатах $\lg \tau \div U^{-1}$.

$T, К$: 1 — 293, 2 — 416. Наклон прямых, $В$: 1 — $3.42 \cdot 10^3$, 2 — $2.15 \cdot 10^3$.

технологических операций, кроме хранения. Так как для отрицательной полярности тантала можно получить зависимость $\tau(U)$ в более широком временном диапазоне (в силу меньшего статистического разброса данных; рис. 1), то в дальнейшем речь пойдет именно об этой полярности. В указанных координатах зависимость $\tau(U)$, занимающая диапазон ~ 8 декад, имеет вид плавной кривой. Однако если рассматривать только половину ее

(диапазон 10^{-5} — 10^{-1} с), то данные можно спрямить (пунктирная линия на рис. 2), причем хорошая прямая получается как в координатах \sqrt{U} , так и U . Такой результат и был получен в [3, 7, 9]. Связано это с большой крутизной зависимости $\tau(U)$ и, как следствие, с узким диапазоном напряжений, в котором происходит пробой. А в этом случае шкалы значений напряжений в координатах U , \sqrt{U} , $\lg U$ и других практически совпадают.

Однако целиком зависимости $\tau(U)$, полученные и при комнатной и повышенной температурах, спрямяются только в координатах типа «туннельных» $\lg \tau \div U^{-1}$ (рис. 3).

Зависимость вида $\tau \sim \exp(U_0/U)$ может быть обусловлена как туннельной инжекцией носителей из катода по механизму Фаулера—Нордгейма, так и лавинным размножением их в диэлектрике путем ударной

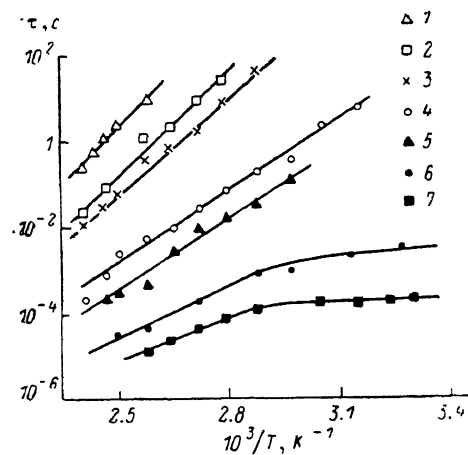


Рис. 4. Зависимости времени запаздывания пробоя τ в окисле тантала от температуры T , полученные для отрицательной полярности тантала.

$U, В$: 1 — 65, 2 — 70, 3 — 75, 4 — 85, 5 — 90, 6 — 100, 7 — 110.

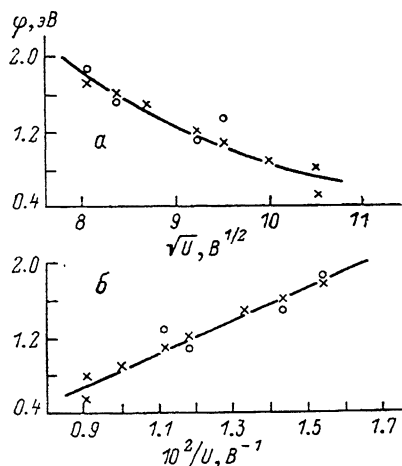


Рис. 5. Зависимость энергии активации времени запаздывания пробоя от напряжения в координатах $\Phi \div \sqrt{U}$ (а) и $\Phi \div U^{-1}$ (б).

ионизации. Но из рис. 2 и 3 следует, что время запаздывания пробоя очень сильно (экспоненциально) зависит от температуры, а это не характерно ни для чисто туннельного тока, ни для ударной ионизации. Поэтому представляло интерес детально изучить температурную зависимость τ в прямых экспериментах.

На рис. 4 в координатах Аррениуса $\lg \tau \div T^{-1}$ приведены результаты этих достаточно трудоемких исследований, полученные для различных напряжений на образце. Экспериментальные результаты можно аппроксимировать прямыми линиями, наклон которых уменьшается с увеличением напряжения. По наклону прямых определяется такой параметр, как энергия активации времени запаздывания пробоя $\Phi = d(\ln \tau)/d(1/kT)$. Для больших напряжений в области температур вблизи комнатной заметно появление участка слабой зависимости $\tau(T)$.

На рис. 5 показана зависимость энергии активации от напряжения в координатах $\Phi \div \sqrt{U}$ и $\Phi \div U^{-1}$. С ростом напряжения от 65 до 110 В величина Φ уменьшается от 1.8 до 0.6 эВ, причем зависимость $\Phi(U)$ спрямяется только в координатах $\Phi \div U^{-1}$, что хорошо соответствует результатам (рис. 3). Видимо, энергия активации Φ не определяется прямо высотой какого-либо физического барьера (глубина залегания ловушки, высота барьера на границе и т. д.), а является просто формальным параметром, величина которого и вид зависимости $\Phi(U)$ определяются существованием зависимости наклона $\gamma = d(\lg \tau)/d(1/U)$ от температуры (рис. 3).

Результаты прямых измерений зависимости $\tau(T)$ (рис. 4) дают еще одну возможность для анализа экспериментальных данных по пробую.

Запишем общую формулу, из которой следовал бы факт наличия энергии активации для времени запаздывания пробоя

$$\tau = \tau_0 \exp(\Phi(U)/kT), \quad (3)$$

где τ_0 — предэкспонента, которая в общем случае может зависеть от U и T . Заметим, что в рамках термофлуктуационной модели разрушения твердых тел [8] значение $\tau_0 = \text{const}$ определяется периодом тепловых колебаний атомов решетки и по порядку величины составляет $\sim 10^{-13}$ с.

На рис. 6 приведены значения τ_0 , полученные экстраполяцией зависимостей $\lg \tau (1/T)$ на рис. 4 в область высоких температур, где $1/T \rightarrow 0$. Видно, что величина τ_0 в (3) не является постоянной и изменяется на 10 (!) порядков величины (10^{-23} — 10^{-13} с) в зависимости от величины напряжения, при котором проводились измерения. Значение $\tau_0 \sim 10^{-13}$ с получается только при самых высоких приложенных напряжениях. Более того, зависимость $\tau_0(U)$ хорошо спрямляется в тех же «туннельных» координатах $\lg \tau_0 \div U^{-1}$ (рис. 6, б), что и зависимости $\tau(U)$ и $\Phi(U)$. Следовательно, кинетическая теория механической прочности [8] не подходит для описания экспериментальных результатов, полученных при исследовании пробоя в Ta_2O_5 , хотя сильная зависимость τ от температуры и указывает на су-

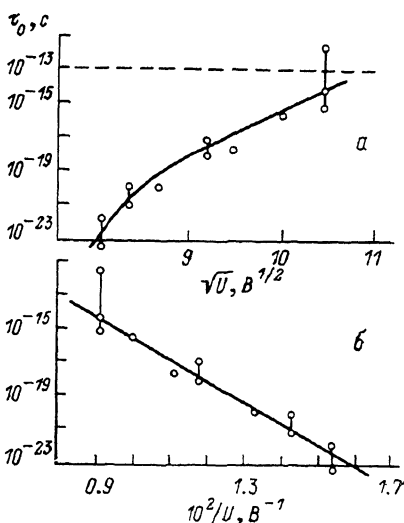


Рис. 6. Зависимость предэкспоненциального множителя в уравнении (3) от напряжения в координатах $\lg \tau_0 \div \sqrt{U}$ (а) и $\lg \tau_0 \div U^{-1}$ (б).

ществленную роль какого-то термоактивационного процесса. Этот же вывод относится и к модели пробоя, предложенной в [3]. Более подходящими являются модели, в которых учитываются как туннельная инжекция носителей из контакта, так и возможность ударной ионизации [16]. Альтернативой ударной ионизации может быть механизм пробоя, также происходящий с участием «горячих» носителей, который был предложен в работе [17].

И все же для понимания физического механизма пробоя необходимо выйти за рамки классических методов исследования пробоя. Перспективными представляются исследования кинетики предпробивных токов и прямое изучение влияния величины тока инжекции из контакта на пробой диэлектрика.

Л и т е р а т у р а

- [1] Taylor R. L., Haring H. E. // J. Electrochem. Soc. 1956. V. 103. N 5. P. 611—613.
- [2] Posa J. G. // Electronic. 1980. V. 53. N 1. P. 119—129.
- [3] Klein N. // Adv. in Phys. 1972. V. 21. N 92. P. 605—629.
- [4] Shousha A. H. M. // J. Non. Cryst. Sol. 1975. V. 17. N 1. P. 100—108.
- [5] Лалэко В. А., Райкерус П. А. // ЖТФ. 1982. Т. 52. № 1. С. 134—135.
- [6] Лалэко В. А., Райкерус П. А. // ЖТФ. 1984. Т. 54. № 1. С. 200—202.
- [7] Бей И. В., Дьяконов М. Н., Муждаба В. М., Ханин С. Д. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 10. С. 3051—3054.
- [8] Регель В. Р., Слудкер А. И., Томашевский Э. Е. Кинетическая теория прочности твердых тел. М., 1974. 560 с.
- [9] Лалэко В. А., Малиненко В. П., Стефанович Г. Б., Шмидт Т. В. // Изв. вузов, физика. 1984. № 5. С. 15—19.
- [10] Betz H. // Zschr. Phys. 1933. Bd 80—86. N. 9—10. S. 644—653.
- [11] Платонов Ф. С. // Изв. вузов, физика. 1967. № 2. С. 7—11.
- [12] Hill R. M., Dissado L. A. // J. Phys. C: Sol. St. Phys. 1983. V. 16. P. 4447—4468.
- [13] Розин И. Т., Харитонов Е. В. // Зав. лаборат. 1972. № 7. С. 830—835.

- 14] Гумбель Э. Статистика экстремальных значений. М., 1965. 450 с.
- 15] Красильщиков Б. Р., Харитонов Е. В. // Электричество. 1979. № 7. С. 21—25.
- 16] Forlani F., Minnaja N. // J. Vac. Sci. and Technol. 1969. V 6. N 4. P. 518—526.
- 17] Fischetti M. V., Di Maria D. J., Brorson S. D. et al. // Phys. Rev. B. 1985. V. 31. N 12. P. 8124—8143.

Петрозаводский государственный
университет им. О. В. Куусинена
Петрозаводск

Поступило в Редакцию
3 марта 1988 г.
В окончательной редакции
26 сентября 1988 г.
