

Влияние процессов усталости на токи переключения в пленках титаната свинца и цирконата-титаната свинца

© А.С. Сидоркин¹, Л.П. Нестеренко¹, А.Ю. Пахомов^{1,2}

¹ Воронежский государственный университет,
Воронеж, Россия

² Университет Пикардии им. Ж. Верна,
Франция, Амьен

E-mail: sidorkin@phys.vsu.ru

С помощью методики переключения в прямоугольных импульсных полях исследованы процессы усталости поляризации в пленках PbTiO_3 и $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ на кремниевых подложках. По данным токов переключения получены зависимости переключаемой поляризации, максимума тока переключения i_{max} и времени переключения τ_s от количества циклов переключения. Показано, что в процессах усталости сохраняется подвижность доменных границ, а наблюдаемая усталость связана с выключением части переключаемого объема за счет закрепления зародышей обратных доменов заряженными дефектами.

Работа выполнена при поддержке Федеральной целевой программы „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России“ на 2009–2013 гг. и программы поддержки европейской мобильности „FP7-IRSES-SIMTECH“.

1. Введение

Среди большого выбора структур и составов важное практическое значение играют новые сегнетоэлектрические материалы, демонстрирующие улучшенные на порядки величины параметры и позволяющие создавать качественно новые функциональные устройства современной электроники. Примерами таких материалов являются тонкие сегнетоэлектрические пленки, которые демонстрируют высокую и управляемую полем диэлектрическую проницаемость, значительную частотную дисперсию свойств и высокую диэлектрическую нелинейность [1–3]. Для успешной реализации и использования сегнетоэлектрических ячеек памяти необходимо детальное изучение процессов реполяризации, особенностей формирования и кинетики доменной структуры в тонких поликристаллических пленках, в том числе процессов старения и усталости, проявляющихся в ухудшении свойств со временем и уменьшении переключаемого заряда при многократно повторяющемся переключении (усталости) [4–9].

Несмотря на обилие моделей, описывающих различные особенности рассматриваемых эффектов, до сих пор не существует устоявшихся представлений о природе указанных процессов.

Целью данной работы было изучить, как меняются различные характеристики переключения в процессе усталости под воздействием импульсов поля прямоугольной формы в тонких сегнетоэлектрических пленках титаната свинца и цирконата-титаната свинца.

2. Эксперимент

Тонкие пленки титаната свинца PbTiO_3 и цирконата-титаната свинца $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ толщиной от 100 нм до 1 мкм были получены при помощи золь-гель-

технологии на подложках из монокристаллического кремния с подслоем платины Pt в качестве нижнего электрода (толщиной не более 500 нм) [10]. Пленки имели поликристаллическую структуру с размерами зерен от 100 до 200 нм. Для электрических измерений термическим напылением были нанесены через маску верхние золотые электроды.

Исследование процессов усталости проводилось при помощи установки, позволяющей изучать кинетику переключения поляризации в тонких пленках по стандартной методике Мерца. Для измерений был использован сигнал прямоугольной формы, который подавался на сегнетоконденсатор с пленкой, соединенный последовательно с эталонным сопротивлением. Ток измерялся по падению напряжения на последовательном сопротивлении 50 Ω и регистрировался на экране осциллографа. Время нарастания переднего фронта импульса составляло не более 10 ns. В работе использовались двухканальный цифровой осциллограф и генератор сигналов произвольной формы. Исследовалось изменение токов реполяризации в процессе многократного циклического переключения на пленках различной толщины при изменяющихся внешних параметрах — частоте и амплитуде внешнего поля, а также изменение максимума тока и времени переключения с ростом числа циклов переключения N .

3. Результаты

Для пленок цирконата-титаната свинца толщиной 100 нм при одинаковой напряженности внешнего поля 800 kV/cm (рис. 1) и разной частоте уменьшение переключаемой поляризации (усталость) начинается на 1 kHz с 10^6 , на 10 kHz — с 10^7 , на 100 kHz — с 10^8 циклов переключения, т.е. с ростом частоты усталость пленок начинается при большем N . Как и сле-

довало ожидать, для используемых значений напряженности внешнего поля, превышающих коэрцитивное поле образца, зависимость $i_{\max}(E)$ получается линейной. При этом в процессе усталости наблюдается общее понижение зависимости максимального тока переключения от напряженности внешнего поля $i_{\max}(E)$, что можно объяснить увеличением внутреннего поля смещения E_b в процессе усталости. Как видно из рис. 2, с увеличением N зависимости $i_{\max}(E)$ смещаются параллельно самим себе, с сохранением угла наклона указанных зависимостей, что указывает на сохранение подвижности доменных границ в процессе усталости.

При неизменной скорости (подвижности) доменных границ значения времени переключения τ_s с ростом

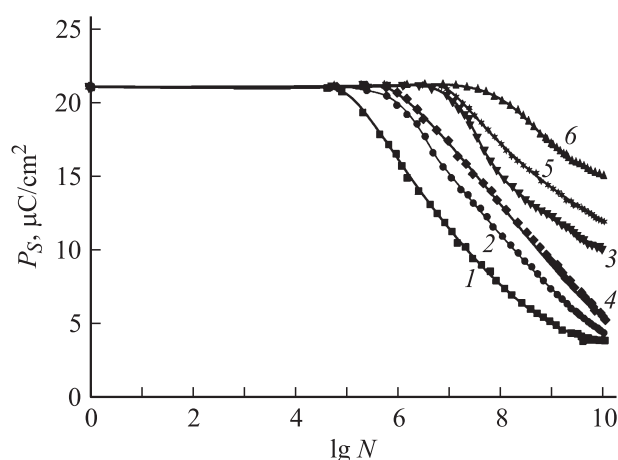


Рис. 1. Зависимость переключаемой поляризации от числа циклов переключения N для пленок $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ различной толщины и при различной частоте внешнего сигнала прямоугольной формы и напряженности поля 800 kV/cm . Толщина пленки, nm и частота внешнего сигнала, kHz : 1 — 100 и 1, 2 — 100 и 10, 3 — 100 и 100, 4 — 200 и 1, 5 — 200 и 10, 6 — 200 и 100.

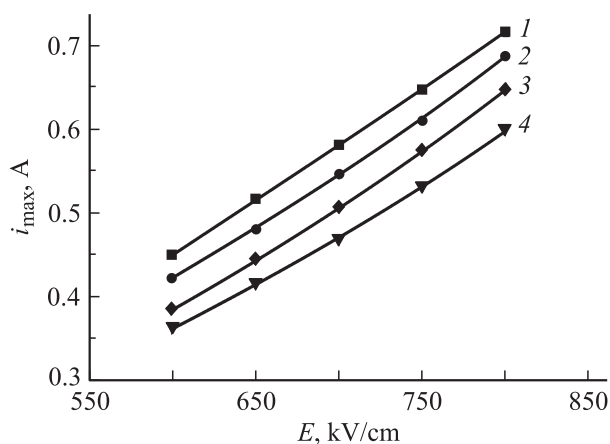


Рис. 2. Зависимости максимального тока переключения i_{\max} от напряженности внешнего поля E при различном числе N для пленок $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ толщиной 100 nm на частоте 1 kHz и напряженности 800 kV/cm : 1 — 10^4 , 2 — 10^6 , 3 — 10^7 , 4 — 10^8 .

Изменение параметров переключения в процессе усталости для пленки $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ толщиной 100 nm при напряженности внешнего поля 800 kV/cm и частоте 1 kHz .

| Количество циклов переключения N | i_{\max}, A | $P, \mu\text{C}/\text{cm}^2$ | Время переключения τ_s, ns |
|------------------------------------|----------------------|------------------------------|--|
| 10^4 | 0.70 | 21 | 900 |
| 10^6 | 0.69 | 16 | 870 |
| 10^7 | 0.63 | 11 | 800 |
| 10^8 | 0.58 | 8 | 750 |

числа N уменьшаются (таблица), что свидетельствует об уменьшении переключаемого объема образца в процессе усталости. Предположительно, это может происходить из-за закрепления стимулирующих переключение зародышей обратных доменов заряженными дефектами в процессе усталости, роль которых могут играть заряженные дислокации. Степень указанного закрепления растет с ростом N из-за накопления указанных дефектов вблизи поверхности в результате многократного переключения, что и приводит к уменьшению переключаемого объема, а следовательно, и максимального значения тока переключения.

Для пленок $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ толщиной 200 nm при той же напряженности, т.е. 800 kV/cm усталость начинается на частоте 1 kHz с 10^7 , на 10 kHz — с 10^8 и на 100 kHz — с 10^9 циклов переключения. Данное обстоятельство указывает на то, что с увеличением толщины пленки выдерживают большее число циклов переключения. Можно предположить, что это связано с уменьшением внутреннего поля смещения E_b и коэрцитивного поля E_c , которые, вероятно, оказывают влияние на процессы усталости [10,11]. Чем меньше значения этих полей, тем устойчивее пленки к многократному переключению. В тех же самых пленках при уменьшении напряженности внешнего поля до 400 kV/cm усталость начинается на частоте 1 kHz с 10^8 , на 10 kHz — с 10^9 и на 100 kHz — с 10^{10} циклов переключения, что указывает на значительное ускорение процессов усталости с ростом амплитуды внешнего поля.

4. Заключение

Полученные результаты подтверждают предположение о влиянии на процессы усталости внутреннего поля смещения и коэрцитивного поля. С увеличением указанных полей процессы усталости происходят интенсивнее. Подобное поведение наблюдалось нами ранее [10,11] в полях синусоидальной формы и повторяется в данном случае для полей прямоугольной формы. Увеличение усталости с уменьшением частоты свидетельствует о том, что определяющую роль в исследуемых процессах усталости играет не само количество циклов переключения, а время воздействия приложенного поля.

Список литературы

- [1] E.L. Colla, A.K. Tagantsev, A.L. Kholkin, N. Setter. *Integr. Ferroelectr.* **10**, 289 (1995).
- [2] M. Grossman, D. Bolten, O. Lohse, U. Boettger, R. Waser, S. Tiedke. *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3830 (2000).
- [3] A.Q. Jiang, Y.Y. Lin, T.A. Tang. *J. Appl. Phys.* **102**, 074 109 (2007).
- [4] G.Le. Rhun, G. Poullain, R. Bouregba. *J. Appl. Phys.* **96**, 3876 (2004).
- [5] G. Zhu, Z. Zeng, L. Zhang, X. Yan. *Appl. Phys. Lett.* **89**, 102 905 (2006).
- [6] E.L. Colla, D.V. Taylor, A.K. Tagantsev, N. Setter. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2478 (1998).
- [7] A.M. Bratkovsky, A.P. Levanyuk. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3177 (2000).
- [8] X.J. Lou, M. Zhang, S.A.T. Redfern, J.F. Scott. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 177 601 (2006).
- [9] L.F. Schloss, P.C. McIntyre. *J. Appl. Phys.* **93**, 1743 (2003).
- [10] А.С. Сидоркин, Л.П. Нестеренко, Б.М. Даринский, А.А. Сидоркин, Г.Г. Булавина, Е.В. Ионова. *Изв. РАН. Сер. физ.* **74**, 1367 (2010).
- [11] А.С. Сидоркин, Л.П. Нестеренко, Б.М. Даринский, А.А. Сидоркин, Г.Г. Булавина. *Кристаллография* **56**, 90 (2011).