Моделирование токов утечки сегнетоэлектрических конденсаторных элементов интегральных схем

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

МИРЭА – Российский технологический университет, г. Москва

sigov@mirea.ru

Аннотация — Рассмотрены вопросы моделирования токов утечки сегнетоэлектрических элементов интегральных схем. Предложена модель, адекватно описывающая вольт-амперные характеристики с учетом полевой миграции кислородных вакансий.

Ключевые слова — интегральная схема, сегнетоэлектрики, токи утечки, моделирование.

I. Введение

Интеграция сегнетоэлектриков в технологии микрои нано- электроники открыла, возможность создания новых типов устройств приема и обработки информации. Среди важнейших из них, следует назвать энергонезависимые сегнетоэлектрические запоминающие устройства (СЗУ), различные виды микро-электро-механических пьезоэлектрических систем (MЭMC). латчиков. пироэлектрические преобразователи и пр. [1, 2]. Особый интерес в технологии микроэлектроники вызывают СЗУ, т.к. данный тип памяти обеспечивает высокие скорости записи/считывания и энергонезависимое хранение информации. В настоящее время рынок СЗУ составляет долларов ежегодно. около 100 млн. США Коммерческие СЗУ производятся с использованием конденсаторов на основе цирконата-титаната свинца (PZT) по 130 нм процессу [3]. Дальнейшему скейлингу технологические препятствуют сложности 3D интеграции. Многие проблемы интеграции можно было бы решить путем использования оксида гафния, выращенного методом атомно-слоевого осаждения, однако нестабильность данного элемента (wake-up эффект, усталость, imprint-запечатление) пока не позволили создать коммерческие устройства [4]. Вместе с этим появляются новые подходы, связанные с мультибитовым принципом записи в ячейках РZТ [5], сегнетоэлектрик-пьезорезистор комбинации слоев (пьезотранзистор) [6].

Так или иначе, для дальнейшего продвижения в области создания устройств памяти и прочих сегнетоэлектрических интегрированных устройств критически важным становится понимание фундаментальных процессов, лежащих в основе работы данных устройств. Определение физических механизмов проводимости дает возможность более понимания процессов переключения глубокого поляризации в сегнетоэлектриках, позволяет получить данные о пространственных зарядах в объеме и на границах раздела, важные для анализа работы СЗУ и полобных интегрированных сегнетоэлектрических устройств. Информация о токах утечки важна для вопросов, связанных такими понимания с характеристиками надежности устройств как релаксация «запечатление» (imprint), усталость, поляризации, деградация и электрический пробой [7]. Кроме того, фундаментальное понимание физики этих необходимо для совершенствования процессов технологии изготовления тонкопленочных сегнетоэлектрических гетероструктур. Токи-процессы низкочастотной релаксации, обусловлены перемешением заряженных дефектов, в основном кислородных вакансий, зарядом/разрядом ловушек в запрещенной зоне И другими возможными Ток низкочастотной механизмами. релаксации неизбежно осложняет измерение стационарного тока утечки, т.к. после подачи на структуру испытательного напряжения требуется продолжительное время (десятки минут) для завершения переходного процесса, обусловленного релаксацией. При этом необходимо иметь в виду, что при длительном воздействии испытательного напряжения может начаться деградация кристаллической структуры пленки. сопровождающаяся увеличением тока с последующим электрическим пробоем. Для оптимизации процесса измерений необходимо разработать адекватную модель токов заряда/разряда сегнетоэлектрической структуры, которой одним ИЗ компонентов является и стационарный ток «утечки».

стационарного тока Традиционно механизмы утечки разделяются на две основные категории, определяемые границами раздела пленка-электрод и объемом пленки. К первой категории относится, прежде всего, полевая эмиссия на выпрямляющем контакте Шоттки, среди вторых - омические токи, токи, ограниченные пространственным зарядом, эмиссия Пула-Френкеля и другие. [8]. Следует отметить, что в одной сегнетоэлектрической структуре токи утечки могут определяться различными механизмами транспорта носителей заряда, а активность этих механизмов зависит, В первую очередь, от действующего электрического поля. Также среди существующих на сегодняшний день моделей проводимости, недостаточное внимание уделяется исследованию влияния на ток утечки двойного

электрического слоя на границе раздела сегнетоэлектрической пленки с электродами, называемого поляризацией электрода. Последнее может приводить к ошибочной идентификации результатов измерений.

II. ОБОСНОВАНИЕ ВЫБОРА МОДЕЛИРУЮЩЕЙ ФУНКЦИИ

Обычно при измерении тока утечки проводится предварительная поляризация структуры напряжением той же полярности в 2-3 раза превышающим коэрцитивное значение с целью исключения из результатов измерения компоненты тока. обусловленного изменением спонтанной поляризации сегнетоэлектрической оксидных пленки. В сегнетоэлектриках спонтанно образуются кислородные вакансии, осуществляющие компенсацию носителей 17]. Положительно лырок [16, заряженные кислородные вакансии движутся в направлении поля, т.е. от анода (+) к катоду (-) накапливаются вблизи интерфейса И при выключенном поле «замораживаются».

Для транспорта кислородных вакансий, если интерфейс металл/сегнетоэлектрик является блокирующим, т.е. отсутствует перенос вакансий VO** между сегнетоэлектриком и электродами, общее количество вакансий в объеме не изменяется [18]. Из-за особенностей дефектной структуры концентрационная поляризация кислородных вакансий велет к увеличению р-проводимости в анодной области и образованию катодной области с п-проводимостью [16]. В результате состояние с носителями п-типа реализуется локально в области накопления кислородных вакансий-доноров, то есть возле катода; противоположная область остается с проводимостью ртипа. Этот индуцированный п-р-переход, вызванный электрическим полем, объясняет наблюдаемую ВАХ полупроводникового диода с p-n переходом, включенного в проводящем направлении [16-18].

При изменении уровня напряжения, действующего на структуре, кислородные вакансии – подвижные положительные заряды перемещаются в электрическом поле образца до установления нового термодинамического равновесия [17]. В результате подобной поляризации образуется своего рода п-рпереход. Каждый раз при новой подаче на структуру напряжения той же полярности, что имеет место при измерении стационарного тока, этот переход оказывается включенным в проводящем направлении.

Кислородные вакансии в значительных концентрациях присутствуют в щелочноземельных титанатах, как в нелегированных, так и с акцепторным легированием. Они положительно заряжены по отношению к регулярной решетке и поэтому в постоянном электрическом поле перемещаются к катоду. Перед катодом кислородные вакансии накапливаются и, как следствие, компенсируются инжектированными из катода электронами. На аноде предполагается электродная реакция

$$0_0 \to \frac{1}{2} O_2(g) + V_0^{**} + 2e',$$
 (1)

которая ведет к инжекции дополнительных вакансий кислорода VO**.

Как альтернатива формуле (1), разряд ионов кислорода может вызывать окисление металла электрода [16]. В обоих случаях керамика претерпевает химическое восстановление, которое приводит к росту п-проводящей катодной области на стороне анода и, таким образом, к увеличению электронной проводимости.

Таким образом, вышесказанное и вид полученных экспериментальных зависимостей стационарного тока в исследуемых сегнетоэлектрических структурах с тонкими пленками РZT различной толщины позволяет взять за основу в качестве моделирующей зависимости ВАХ полупроводникового диода с p-n-переходом, включенного в проводящем направлении относительно внешнего напряжения:

$$V(I) = \eta \phi_T \ln \left(\frac{I}{I_0} + 1\right) + r_b \cdot I, \qquad (2)$$

где фТ – температурный потенциал,

 $\eta - \varphi$ актор неидеальности,

I0 –тепловой ток (ток насыщения),

rb – сопротивление «базы» – объема пленки РZТ при относительно низкой напряженности электрического поля.

III. Разработка новой универсальной модели стационарного тока утечки конденсаторных сегнетоэлектрических структур

Для моделирования тока через сегнетоэлектрическую структуру в проводящем направлении предлагается модификация уравнения (2) в виде:

$$V(I) = \phi_T \cdot ln\left(\frac{I}{I_0} + 1\right) + k_b \cdot I^n, \tag{3}$$

где n – показатель степени, учитывающий нелинейность зависимости тока от напряжения, падающего на объеме сегнетоэлектрической пленки, например, ток ОПЗ, эмиссия Пула-Френкеля и т.д. при действии больших напряженностей электрического поля, kb – коэффициент аппроксимации. При n = 1 уравнение (2) идентично исходному уравнению (1) kb = Rb.

В модифицированной зависимости (2) исключен коэффициент неидеальности η, так как параметр пфТ характеризует непосредственно p-n переход, что в рассматриваемом случае индуцированного p-n перехода в объеме сегнетоэлектрической пленки неуместно.

Нелинейная зависимость тока, протекающего через объём сегнетоэлектрической пленки, от напряжения обусловлена действием таких обычно рассматриваемых механизмов транспорта как эмиссия Пула-Френкеля, ток ОПЗ или прыжковая проводимость [19-22]. Определение параметров универсальной модели с использованием экспериментальных данных выполнялось в различных диапазонах действующего поля. Аппроксимация выполнялась как в координатах ток-напряжение, так и поле Е – плотность тока J с использованием метода нелинейной регрессии:

$$E(J) = \Phi_T \cdot ln\left(\frac{J}{J_0} + 1\right) + k_b \cdot J^n \tag{4}$$

Результаты аппроксимации экспериментальных функций показали, что учет нелинейной зависимости сопротивления объема пленки РZT введением в моделирующую функцию степенного показателя п обеспечивает наилучшую аппроксимацию во всем диапазоне измеряемых значений, 0 чем более свидетельствуют высокие значения коэффициента корреляции и более низкие значения среднего квадратического отклонения СКО.

Аппроксимация экспериментальных J(E) BAX зависимостей полупроводникового диода (уравнение 1) дает удовлетворительные результаты только в области малых полей (не превышающих коэрцитивного поля). Тем не менее, значения параметров качества аппроксимации (среднего квадратического отклонения СКО и коэффициента корреляции) при учете нелинейности сопротивления сегнетоэлектрической объема пленки (базы) оказываются неизменно лучше.



Рис. 1. Зависимости, моделирующие стационарный ток утечки структуры Pt/PZT/Hg. Толщина пленки PZT 1067 нм. Отрицательная полярность испытательного напряжения на верхнем электроде. Параметр нелинейности 1 и 1,47

На рис. 1 показаны зависимости, моделирующие в соответствии с уравнением (3) стационарный ток утечки структуры Pt/PZT/Hg с пленкой PZT толщиной 1067 нм при отрицательной полярности испытательного напряжения на верхнем электроде при значениях параметра нелинейности 1 и 1,47.

Влияние встроенного поля объемного некомпенсированного заряда инжектированных неравновесных носителей, направленного навстречу действующему полю, оказывается более существенным. Это влияние становится заметным при больших уровнях инжекции, т.е. с увеличением внешнего напряжения на структуре. Таким образом, отрицательная обратная связь: действует поле инжектированного заряда, направленное навстречу действующему полю, снижает эффективность действия внешнего поля. Как следствие с увеличением напряженности электрического поля снижается крутизна J(E) зависимости.

На рис. 2 показаны зависимости дифференциальной (сплошная красная) и интегральной (синяя пунктирная) проводимости объема пленки РZT от действующего в структуре поля с пленкой ЦTC толщиной 1165 нм с коэффициентом нелинейности n = 2,14. Определенное значение дифференциальной проводимости составляет 1,48·10-12 при E \approx 60 кВ/см.



Рис. 2. Зависимости дифференциальной (сплошная красная) и интегральной (синяя пунктирная) проводимости объема пленки ЦТС от действующего поля. Толщина пленки РZT 1165 нм. Коэффициент нелинейности n = 2,14

На рис. 3 представлены зависимости интегральной (красная сплошная) и дифференциальной (синяя пунктирная) проводимости объема пленки РZT от действующего на структуре поля с пленкой РZT толщиной 1067 нм при коэффициенте нелинейности n = 1,47. Максимальное значение дифференциальной проводимости составляет 2,71.10-12 См при E = 153,6 кВ/см.



Рис. 3. Зависимости интегральной (красная сплошная) и дифференциальной (синяя пунктирная) проводимости объема пленки РZT от действующего поля. Толщина пленки РZT 1067 нм. Коэффициент нелинейности n = 1,47



Рис. 4. Зависимости, моделирующие стационарный ток утечки структуры Pt/PZT/Hg. Толщина пленки PZT 552 нм. Отрицательная полярность испытательного напряжения на верхнем электроде при значениях параметра нелинейности 1 и 1,87. Пунктиром показаны моделирующие зависимости, параметры которых определялись по результатам измерения стационарного тока утечки в диапазоне до 7,5 В при заданных значениях коэффициента нелинейности

На рис. 4 показаны моделирующие J(E) зависимости для структуры с пленкой ЦТС толщиной 552 нм. Параметры аппроксимирующей кривой с учетом нелинейной зависимости сопротивления

(проводимости) от значения протекающего тока согласно уравнениям (2) и (3) определялись во всем диапазоне экспериментальных значений напряжения, т.е. до 10 В, при этом параметр нелинейности п оказывается равным 1,87.

сопоставления определялись параметры Лля аппроксимирующей кривой в диапазоне до 7,5 В при заданных значениях параметра нелинейности n = 1 и n 1,87. Значения основных параметров кривых = моделирования показаны соответствующими сплошная зависимостями (синяя И штриховая коричневая линии соответственно).

IV. Выводы

Таким образом, разработана универсальная модель стационарного тока утечки сегнетоэлектрических конденсаторных структур в виде модифицированной ВАХ полупроводникового диода с p-n-переходом, учитывающей нелинейность зависимости объемного сопротивления сегнетоэлектрической пленки от уровня инжекции, определяемого величиной протекающего Адекватность модели успешно проверена тока. моделированием стационарного тока, протекающего конденсаторные структуры через С сегнетоэлектрическими пленками РZT различной толщины. Разработанная модель может быть использована для повышения рабочих параметров и надежности при проектировании и разработке интегральных схем с сегнетоэлектрическими конденсаторами, в том числе сегнетоэлектрических запоминающих устройств, МЭМС и др.

Поддержка

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ № 19-29-03058, а также Министерства науки и высшего образования РФ (0706-2020-0022).

ЛИТЕРАТУРА

- Vorotilov K.A., Sigov A.S. Ferroelectric memory // Physics of the Solid State. 2012. V. 54 (5). P. 894-899.
- [2] Izyumskaya N. et al. Processing, structure, properties, and applications of PZT thin films // Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences. 2007. V. 32 (3-4). P. 111-202.
- [3] Schumacher M., Dietz G. W., Waser R. Dielectric relaxation of perovskite type oxide thin films // Integr. Ferroelectr. 1995. V. 10. P. 231-245.
- [4] Grimley E.D. et al. Structural Changes Underlying Field-Cycling Phenomena in Ferroelectric HfO2 Thin Films // Advanced Electronic Materials. 2016. V. 2. № 9. P. 1600173.
- [5] Park J.H. et al. Ultimate multibit IT-FeRAM with selectively nucleated grown single-grain PbZr0.52Ti0.48O3 for verylarge-scale-integrated memory // J. Appl. Phys. 2016. V. 49. P. 124108.
- [6] Chang J.B. et al. First realization of the piezoelectronic stress-based transduction device // Nanotechnology. 2015. V. 26. № 37. P. 375201.
- [7] Waser R. Science and Technology of Electroceramic Thin Films (NATO ASI series, v. 284). Dordrecht: Kluwer, 1995. 223 p.
- [8] Sigov A., Podgorny Yu., Vorotilov K., Vishnevskiy A., Leakage currents in ferroelectric thin films // Phase Transitions. 2013. V. 86. № 11. P. 1141-1151.

- [9] Podgorny Y., Vorotilov K., Sigov A. Negative differential conductivity in thin ferroelectric films // Appl. Phys. Lett. – 2014. V. 105. P. 182904.
- [10] Kotova N.M., Vorotilov K.A., Seregin D.S., Sigov A.S. Role of precursors in the formation of lead zirconatetitanate thin films // Inorganic Materials. 2014. V. 50. № 6. P. 612-616.
- [11] Podgorny Yu.V., Antonovich A.N., Vorotilov K.A., Sigov A.S. Discharge currents in dense and porous PZT films // Ferroelectrics. 2019. V. 544 (1), P. 82-87.
- [12] Podgorny Yu.V., Vorotilov K.A., Sigov A.S. Determination of the Steady State Leakage Current in Structures with Ferroelectric Ceramic Films // Physics of the Solid State. V. 60 (3). P. 433-436.
- [13] Souza R.A.D., Metlenko V., Park D., Weirich T.E. Behavior of oxygen vacancies in single-crystal SrTiO3: Equilibrium distribution and diffusion kinetics // Physical Review. 2011. V. 85. P. 174109.
- [14] Holzlechner G., Kastner D., Slouka C., Hutte H., Fleig J. Oxygen vacancy redistribution in PbZrxTi1-xO3 (PZT) under the influence of an electric field // Solid State Ionics. 2014. V. 262. P. 625-629.
- [15] Angadi M, Auciello O, Krauss AR, Gundel HW. The role of electrode material and polarization fatigue on electron emission from ferroelectric Pb(ZrxTi1-x)O3 cathodes // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 77. P. 2659.

- [16] Baiatu T., Waser R., Hardtl K.-H. DC Electrical Degradation of Perovskite-Type Titanates: III, A Model of the Mechanism // J. Am. Ceram. Soc. 1990. V. 73. P. 1663-1673.
- [17] Yang C.H. et al. Electric modulation of conduction in multiferroic Ca-doped BiFeO3 films // Nature Mater. 2009. V. 8. P. 485-493.
- [18] Cao Y., Shen J., Randall C.A., Chen L.Q., Phase-field modeling of switchable diode-like current-voltage characteristics in ferroelectric BaTiO3 // App. Phys. Lett. 2014. V. 104. P. 182905-5.
- [19] Zafar S. et al. The electronic conduction mechanism in barium strontium titanate thin films Applied Physics Letters. 1998. V. 73. № 24. P. 3533-3535.
- [20] Simmons J.G. Electronic conduction through thin insulating films in Handbook of Thin Film Technology / Eds. L. Maissel and R. Glang, chapter 14. New York: McGraw-Hill, 1970.
- [21] Smith R.W., Rose A. Space-Charge-Limited Currents in Single Crystals of Cadmium Sulfide // Phys. Rev. 1955. V. 97. P. 1538.
- [22] Chiu F.-C. A Review on Conduction Mechanisms in Dielectric Films // Advances in Materials Science and Engineering. 2014. V. 2014. P. 578168.

Simulation of Leakage Currents of Ferroelectric Capacitors in Integrated Circuits

A.S. Sigov, Yu.V. Podgorny, K.A. Vorotilov

MIREA - Russian Technological University, Moscow, sigov@mirea.ru

Abstract — Thin ferroelectric films demonstrate unique physical properties, including spontaneous polarization, high permittivity, piezo- and pyroelectric activity, etc. For this reason, they are used and explored for applications in different electronic devices, including ferroelectric random access memory (FRAM), piezoelectric microelectromechanical systems, dynamic random access memory (DRAM), energy harvesting devices, etc. Leakage currents are a very important issue that should be taken into account in construction and operation of ferroelectric devices. In addition, leakage current is a sensitive diagnostic tool for monitoring material properties, such as defects, interfaces, and so on, that affect device performance and reliability. In this paper we present a new universal model of the steadystate leakage current of ferroelectric capacitor structures. It is based on modified equation for the leakage current of semiconductor diode with p-n junction, taking into account nonlinearity of the dependence of volume resistance of ferroelectric film on the injection level determined by the value of the flowing current. P-n junction is formed due to migration of oxygen vacancies and their accumulation at the metal-ferroelectric interface. When the level of voltage acting on the structure changes, oxygen vacancies - mobile positive charges - move in the electric field until a new thermodynamic equilibrium is established. The adequacy of the model has been successfully verified by simulating steady-state current flowing through capacitor structures with ferroelectric PZT films of various thicknesses. The developed model can be used to improve operating parameters and reliability for design and development of integrated circuits with ferroelectric capacitors, including ferroelectric memory devices, MEMS, etc.

Keywords — integrated circuit, ferroelectrics, leakage currents, simulation.

REFERENCES

- Vorotilov K.A., Sigov A.S. Ferroelectric memory // Physics of the Solid State. 2012. V. 54 (5). P. 894-899.
- [2] Izyumskaya N. et al. Processing, structure, properties, and applications of PZT thin films // Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences. 2007. V. 32 (3-4). P. 111-202.
- [3] Schumacher M., Dietz G. W., Waser R. Dielectric relaxation of perovskite type oxide thin films // Integr. Ferroelectr. 1995. V. 10. P. 231-245.
- [4] Grimley E.D. et al. Structural Changes Underlying Field-Cycling Phenomena in Ferroelectric HfO2 Thin Films // Advanced Electronic Materials. 2016. V. 2. № 9. P. 1600173.
- [5] Park J.H. et al. Ultimate multibit IT-FeRAM with selectively nucleated grown single-grain PbZr0.52Ti0.48O3 for verylarge-scale-integrated memory // J. Appl. Phys. 2016. V. 49. P. 124108.
- [6] Chang J.B. et al. First realization of the piezoelectronic stress-based transduction device // Nanotechnology. 2015. V. 26. № 37. P. 375201.

- [7] Waser R. Science and Technology of Electroceramic Thin Films (NATO ASI series, v. 284). Dordrecht: Kluwer, 1995. 223 p.
- [8] Sigov A., Podgorny Yu., Vorotilov K., Vishnevskiy A., Leakage currents in ferroelectric thin films // Phase Transitions. 2013. V. 86. № 11. P. 1141-1151.
- [9] Podgorny Y., Vorotilov K., Sigov A. Negative differential conductivity in thin ferroelectric films // Appl. Phys. Lett. – 2014. V. 105. P. 182904.
- [10] Kotova N.M., Vorotilov K.A., Seregin D.S., Sigov A.S. Role of precursors in the formation of lead zirconatetitanate thin films // Inorganic Materials. 2014. V. 50. № 6. P. 612-616.
- [11] Podgorny Yu.V., Antonovich A.N., Vorotilov K.A., Sigov A.S. Discharge currents in dense and porous PZT films // Ferroelectrics. 2019. V. 544 (1), P. 82-87.
- [12] Podgorny Yu.V., Vorotilov K.A., Sigov A.S. Determination of the Steady State Leakage Current in Structures with Ferroelectric Ceramic Films // Physics of the Solid State. V. 60 (3). P. 433-436.
- [13] Souza R.A.D., Metlenko V., Park D., Weirich T.E. Behavior of oxygen vacancies in single-crystal SrTiO3: Equilibrium distribution and diffusion kinetics // Physical Review. 2011. V. 85. P. 174109.
- [14] Holzlechner G., Kastner D., Slouka C., Hutte H., Fleig J. Oxygen vacancy redistribution in PbZrxTi1-xO3 (PZT) under the influence of an electric field // Solid State Ionics. 2014. V. 262. P. 625-629.

- [15] Angadi M, Auciello O, Krauss AR, Gundel HW. The role of electrode material and polarization fatigue on electron emission from ferroelectric Pb(ZrxTi1-x)O3 cathodes // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 77. P. 2659.
- [16] Baiatu T., Waser R., Hardtl K.-H. DC Electrical Degradation of Perovskite-Type Titanates: III, A Model of the Mechanism // J. Am. Ceram. Soc. 1990. V. 73. P. 1663-1673.
- [17] Yang C.H. et al. Electric modulation of conduction in multiferroic Ca-doped BiFeO3 films // Nature Mater. 2009. V. 8. P. 485-493.
- [18] Cao Y., Shen J., Randall C.A., Chen L.Q., Phase-field modeling of switchable diode-like current-voltage characteristics in ferroelectric BaTiO3 // App. Phys. Lett. 2014. V. 104. P. 182905-5.
- [19] Zafar S. et al. The electronic conduction mechanism in barium strontium titanate thin films Applied Physics Letters. 1998. V. 73. № 24. P. 3533-3535.
- [20] Simmons J.G. Electronic conduction through thin insulating films in Handbook of Thin Film Technology / Eds. L. Maissel and R. Glang, chapter 14. New York: McGraw-Hill, 1970.
- [21] Smith R.W., Rose A. Space-Charge-Limited Currents in Single Crystals of Cadmium Sulfide // Phys. Rev. 1955. V. 97. P. 1538.
- [22] Chiu F.-C. A Review on Conduction Mechanisms in Dielectric Films // Advances in Materials Science and Engineering. 2014. V. 2014. P. 578168.