

УДК 539.23,621.372

ПОЛЕВЫЕ ЭФФЕКТЫ В ЭЛЕКТРОПРОВОДНОСТИ КОНДЕНСАТОРНЫХ СТРУКТУР ПЛАТИНА/АЛМАЗОПОДОБНЫЙ УГЛЕРОД/ПЛАТИНА

© 2023 г. А. С. Веденеев^{а, *}, В. В. Рыльков^{а, b}, В. А. Лузанов^а, С. Н. Николаев^b,
А. М. Козлов^а, А. С. Бугаев^{а, c}

^а Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН,
пл. Введенского, 1, Фрязино Московской обл., 141190 Российская Федерация

^b Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”,
пл. Академика Курчатова, 1, Москва, 123182 Российская Федерация

^c Московский физико-технический институт,
Институтский пер., 9, Долгопрудный Московской обл., 141700 Российская Федерация

*E-mail: asv335@mail.ru

Поступила в редакцию 19.10.2022 г.

После доработки 15.01.2023 г.

Принята к публикации 25.03.2023 г.

Исследованы полевые зависимости электропроводности структур Pt/DLC/Pt на базе тонких слоев высокоомного алмазоподобного углерода (DLC). Показано, что неомическое поведение проводимости структур описывается формулой Френкеля–Пула и связано с коррелированным распределением зарядов в условиях их перколяционного прыжкового транспорта между низкоомными областями DLC.

DOI: 10.31857/S0033849423080132, EDN: UTZQTW

1. Неомическое поведение проводимости σ обычно исследуют в структурах типа металл–диэлектрик–металл (МДМ), где наблюдается ее рост σ в электрическом поле E по закону вида

$$\ln \sigma(E) \propto E^n.$$

Механизмы электронного переноса рассматривают в рамках различных моделей проводимости диэлектриков: ионизация изолированных кулоновских ловушек (эффект Френкеля) [1, 2], ионизация кулоновских ловушек с перекрывающимися потенциалами (модель Хилла–Адачи) [3, 4], многофононная ионизация нейтральных ловушек (модель Макрама–Эбейда) [5], фонон-облегченное туннелирование между ловушками (модель Насырова–Гриценко) [6], протекание носителей заряда в случайном кулоновском потенциале [7, 8]. Кроме того, на перенос носителей оказывают влияние контакты диэлектрик–металл (эффекты Шоттки и Фаулера–Нордгейма) [9].

В МДМ-структурах на основе алмазоподобного углерода (diamond-like carbon, DLC) нелинейное поведение проводимости может иметь необычную природу. Способность углерода реализовывать разные типы гибридизации электронных оболочек (плоскостная “графеновая” – sp^2 -тип, простран-

ственная “алмазная” – sp^3 и линейная “карбиновая” – sp) обеспечивает возможность создания материалов, содержащих локальные области с различными свойствами (sp^3 – диэлектрик с высокой теплопроводностью, sp^2 – полуметалл и др.). Отметим в этой связи, что слои DLC следует рассматривать как ансамбль низкоомных sp^2 -включений (нанокластеров) в диэлектрической sp^3 -матрице, дефектность которой зависит от условий синтеза.

Нелинейное поведение вольт-амперных характеристик (ВАХ), обнаруженное в DLC МДМ-структурах, нередко связывают с токами, ограниченными пространственным зарядом (ТОПЗ) [10–13], и/или с эффектами резистивного переключения (РП) структур из высокоомного (high resistive state, HRS) в низкоомное (low resistive state, LRS) состояние, обусловленными электромиграцией катионов из электрода структур [11, 14]. При изучении ВАХ слоев DLC, легированных железом [15], наблюдались проявления $sp^3 \rightarrow sp^2$ локальных превращений в полях $\geq 3 \times 10^5$ В/см, которые инициировали нелинейность ВАХ. Обратимые эффекты РП отмеченной природы были обнаружены в работе [16].

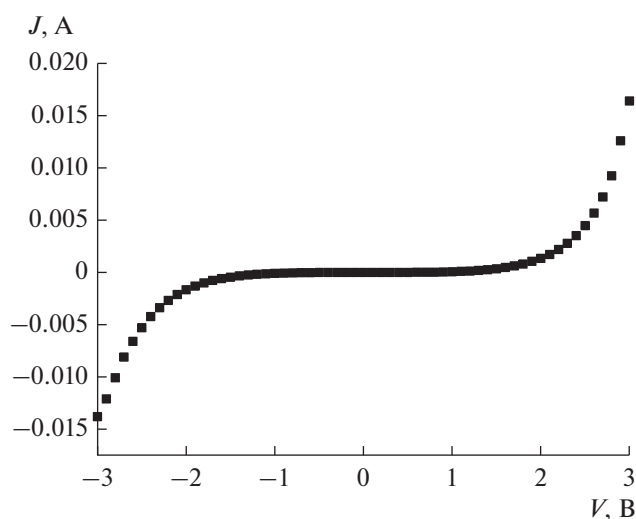


Рис. 1. Вольт-амперные характеристики системы Pt/DLC/Pt.

В условиях прыжкового транспорта нелинейность ВАХ может быть также связана с тем, что поперечная проводимость тонких пленок существенно определяется мезоскопическими эффектами – формированием перколяционных цепочек из центров с наиболее узкими межцентровыми (или межкластерными) потенциальными барьерами [17–19], в которых достигается максимальная величина электрического поля.

Цель данной работы – изучение полевых эффектов в проводимости МДМ-структур на основе тонких (20 нм) высокоомных слоев DLC, в которых соотношение фаз с sp^2 - и sp^3 -гибридизацией можно контролировать условиями роста [20].

2. Слои DLC были нанесены на покрытие Pt (100 нм) стеклянную подложку путем высококачественного диодного распыления С-мишени при повышенной (до 2 кэВ) энергии ионов Ag [20]. Верхние Pt-электроды диаметром 1 мм были нанесены на поверхность DLC методом магнетронного распыления.

Исследования кристаллической структуры слоев DLC были выполнены методами рентгеновской дифрактометрии с использованием модернизированного двухкристального рентгеновского дифрактометра ДРОН-3, работающего по схеме Брегга–Бертрано на длине волны излучения 0.15405 нм. Также были изучены особенности структуры слоев DLC методом спектроскопии комбинированного рассеяния с использованием спектрометра EnSpectrRamMicsM532 с длиной волны лазера 532 нм. Эти исследования показали, что слои сильно аморфизированы (размер областей когерентного рассеяния ~ 1 нм соизмерим с размером элементарных ячеек углеродных материалов) и содержат области с sp^2 - и sp^3 -типом ги-

бридизации (см. [20]). Увеличение энергии ионов Ag вызывало увеличение сопротивления структур (от единиц Ом до >10 МОм), как мы полагаем, за счет увеличения доли диэлектрической фазы с sp^3 -гибридизацией.

При комнатной температуре в “вертикальной” геометрии были исследованы полевые зависимости кондуктанса структур Pt/DLC/Pt. Выбор материала электродов обусловлен тем, что Pt не создает подвижные ионы в DLC, т.е. изучаемые особенности ВАХ не должны быть связаны с электромиграцией ионов.

Измерения ВАХ структур проведены с использованием многофункционального источника-измерителя NI PXI-4140 (National Instruments) и аналитической зондовой станции PM5 (Cascade Microtech), снабженной специализированной системой PSM-100 (Motic) с оптическим микроскопом, позволяющей осуществлять микрометрическое перемещение зондов (размер зонда 5 мкм, точность перемещения 3 мкм).

Вольт-амперные характеристики измерены при развертке напряжения смещения V верхнего электрода по ступенчато-линейному закону в последовательности $0 \rightarrow +V_m \rightarrow 0 \rightarrow -V_m \rightarrow 0$ с амплитудой ступеньки 0.1 В, ее длительностью 10 мс и максимальным значением $V_m = 3$ В. Отметим, что увеличение длительности ступеньки развертки в несколько раз не приводило к изменению ВАХ.

На рис. 1 представлены типичные зависимости силы тока J от падения напряжения V на структуре. Исходно структуры находились в высокоомном (high resistance state – HRS) состоянии с сопротивлением $V/J \sim 1$ МОм. С увеличением напряжения ВАХ становятся нелинейными – при обеих полярностях V сопротивление структур спадает до ≤ 200 Ом при $V \geq 3$ В.

В режиме HRS на зависимостях $\lg(J)$ от $\lg(V)$ (рис. 2) можно выделить линейные участки, различающиеся показателем степени n ($J \propto V^n$): линейный (закон Ома, $n \approx 1$) при $V \leq 0.2$ В, затем степенной с $n \approx 2$ ($0.3 < V < 1$ В) и $n > 4$ ($V > 1$ В). Степенной закон с $n \approx 2$ часто связывают с проявлением ТОПЗ [12], который при наличии ловушек может сменяться областью резкого роста тока ($n > 3$) в условиях их предельного заполнения [10, 11, 13]. В рамках представлений о ТОПЗ [12] можно получить оценки параметров, характеризующих исследуемые структуры.

Переход от омического к степенному участку ВАХ с $n \approx 2$ происходит при концентрации инжектированного в DLC заряда

$$N_i \sim \kappa V / 2\pi e d^2$$

($\kappa \approx 6$ – диэлектрическая проницаемость DLC [15], а $d \approx 20$ нм – его толщина), превышающей концентрацию равновесных носителей N_0 [12].

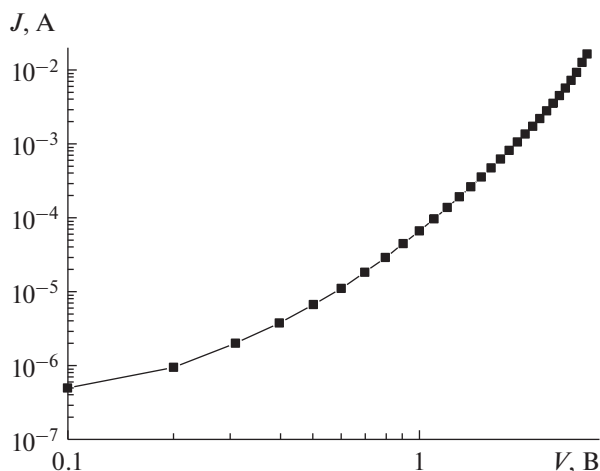


Рис. 2. Зависимость силы тока J от напряжения V .

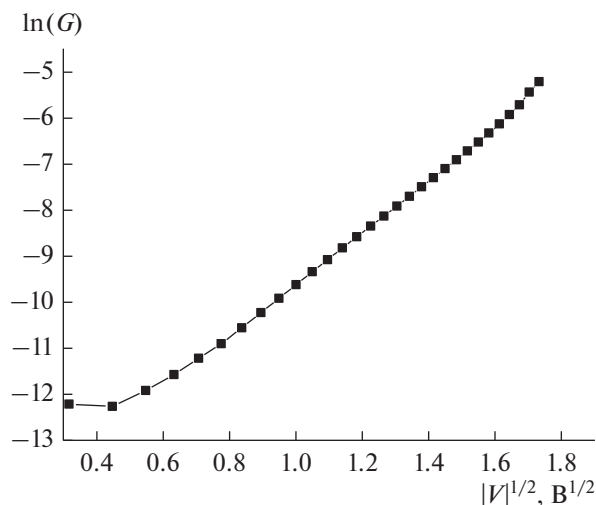


Рис. 3. Зависимости кондактанса G от $|V|^{1/2}$.

Учитывая этот факт, по напряжению перехода $V_1 \approx 0.2$ В (см. рис. 2) находим, что $N_0 \sim 10^{18}$ см⁻³. Столь высокая концентрация равновесных носителей заряда при сопротивлении структур ~ 1 МОм означает, что в режиме HRS электронный перенос в слое DLC скорее всего имеет прыжковый характер, а проводимость структур по площади сильно неоднородна и определяется отдельными локализованными каналами (филаментами). Кроме того, поскольку переход от степенного участка ВАХ с $n \approx 2$ к области предельного заполнения ловушек ($n > 3$) происходит при концентрации инжектированного заряда, превышающей концентрацию ловушек N_t , по напряжению этого перехода $V_2 \sim 2$ В находим $N_t > \kappa V_2 / 2\pi e d^2 \sim 10^{19}$ см⁻³. При этом среднее расстояние между ловушками, $N_t^{-1/3} < 5$ нм, которое характеризует размер области, приходящейся на одну ловушку (или sp^2 -нанокластер), согласуется с результатами рентгенодифракционной спектроскопии [20].

Выше отмечалось, что нелинейность ВАХ в условиях прыжкового транспорта нередко связывают с эффектом Френкеля–Пула [1, 2] (уменьшение в электрическом поле $E = V/d$ энергии ионизации кулоновских центров). В этих условиях кондактанс $G = J/V$ описывается формулой

$$G \propto \exp(A\alpha E^{1/2} / kT), \quad (1)$$

где A – численный множитель ($A = 1$ или $1/2$ в случае, когда рекомбинация имеет моно- или бимолекулярный характер соответственно), $\alpha = 2(e^3/\kappa)^{1/2}$, κ – диэлектрическая проницаемость DLC.

В работе [21] при рассмотрении прыжковой проводимости легированных слабо компенсированных полупроводников, в которых присутствуют 1-, 2- или 0-примесные комплексы [22], показано, что полевая зависимость кондактанса описывает-

ся формулой Френкеля–Пула (1) с множителем $A = 0.69$.

Неомичность ВАХ может быть также связана с формированием перколяционных цепочек из центров с наиболее узкими межцентровыми (или межкластерными) потенциальными барьерами [18, 19]. Электронный перенос в неомическом режиме в условиях перколяционной проводимости рассмотрен в [7], где показано, что в относительно сильных полях $eEa > kT$ (kT/V_0) ^{ν} происходит переход к экспоненциальной зависимости силы тока J от E и ВАХ приобретает вид, подобный закону Френкеля–Пула (1) с $A \approx 0.3$ [23]. Здесь $\alpha = (eaV_0)^{1/2}$, V_0 и a – амплитуда и пространственный масштаб флуктуаций потенциала, $\nu \approx 1$ – критический индекс теории протекания [22]. Отметим, что величина присутствующего в модели [21] параметра

$$\alpha = [eaV_0]^{1/2} \approx [(e^3/\kappa)(N_t/N_s)]^{1/2}$$

(N_t – концентрация заряженных источников флуктуации потенциала, N_s – концентрация экранирующих носителей заряда) близка к параметру $\alpha = 2(e^3/\kappa)^{1/2}$ в модели Френкеля–Пула. В нашем случае флуктуационный потенциал может быть связан с хаотическим распределением заряда, локализованного на электрически активных дефектах (sp^2 -нанокластерах) в sp^3 -матрице DLC.

Таким образом, по величине численного коэффициента A можно судить о механизме неомического поведения проводимости.

3. Обращаясь к экспериментальным данным, отметим, что в соответствии с формулой (1) полевые зависимости кондактанса G линеаризуются в координатах $\ln(G) - V^{1/2}$ (рис. 3). Наклон линейного участка этих зависимостей (в диапазоне $V^{1/2} \geq 0.5$ В^{1/2}) дает величину

$$\partial \ln(G) / \partial V^{1/2} = A\alpha(1/d)^{1/2} / kT \approx 6.1 \text{ В}^{-1/2}.$$

Отсюда, зная $d = 20$ нм, нетрудно определить множитель $A \approx 0.68$. Найденная величина практически совпадает с множителем $A = 0.69$, полученным в модели прыжковой проводимости легированных слабо компенсированных полупроводников [21].

Таким образом, нелинейное поведение ВАХ структур Pt/DLC/Pt в режиме HRS может быть связано с коррелированным распределением зарядов в условиях их прыжкового транспорта между электрически активными дефектами (низкоомными sp^2 -нанокластерами) в DLC, что аналогично формированию примесных 2-комплексов в легированных слабо компенсированных полупроводниках [21, 22]. Отметим, что характерный размер нанокластеров $\sim N_t^{-1/3} < 5$ нм согласуется с результатами рентгенодифракционный спектроскопии пленок DLC [20] и с результатами, полученными в работе [24].

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена в рамках государственного задания ИРЭ им. В.А. Котельникова РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Frenkel J.* // Phys. Rev. 1938. V. 54. № 8. P. 647.
2. *Френкель Я.И.* // ЖЭТФ. 1938. Т. 8. № 12. С. 1292.
3. *Hill R.M.* // Philosophical Magazine. 1971. V. 23. № 181. P. 59.
4. *Adachi H., Shibata Y., Ono S.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 1971. V. 4. № 7. P. 988.
5. *Makram-Ebeid S.S., Lannoo M.* // Phys. Rev. B. 1982. V. 25. № 10. P. 6406.
6. *Nasyrov K.A., Gritsenko V.A.* // J. Appl. Phys. 2011. V. 109. № 9. Article No. 093705.
7. *Шкловский Б.И.* // ФТП. 1979. Т. 13. № 1. С.93.
8. *Шкловский Б.И., Эфрос А.Л.* // Успехи физ. наук. 1975. Т. 117. № 11. С. 401.
9. *Насыров К.А., Гриценко В.А.* // Успехи физ. наук. 2013. Т. 183. № 10. С. 1099.
10. *Sharma Y., Misra P., Katiyar R.S.* // J. Appl. Phys. 2014. V.116. № 8. Article No. 084505.
11. *Peng P., Xie D., Yang Y. et al.* // J. Appl. Phys. 2012. V.111. № 8. Article No. 084501.
12. *Lampert A., Mark P.* Current Injection in Solids. N.Y.: Acad. Press, 1970.
13. *Andreeva N., Ivanov A., Petrov A.* // AIP Advances. 2018. V. 8. № 25. Article No. 025208.
14. *Zhuge F., Dai W., He C. L. et al.* // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 96. № 16. Article No.163505.
15. *Takabayasi S., Yang M., Ogawa Sh. et al.* // J. Appl. Phys. 2014. V. 116. № 9. Article No. 093507.
16. *Веденеев А.С., Лузанов В.А., Рыльков В.В.* // Письма в ЖЭТФ. 2019. Т. 109. № 3. С. 170.
17. *Liao X., Zhang X., Takai K., Enoki T.* // J. Appl. Phys. 2010. V. 107. № 1. P. 013709.
18. *Pollak M., Hauser J.J.* // Phys. Rev. Lett. 1973. V. 31. № 21. P.1304.
19. *Райх М.Э., Рузин И.М.* // Письма в ЖЭТФ. 1986. Т. 43. № 9. С. 437.
20. *Лузанов В.А., Веденеев А.С.* // РЭ. 2018. Т. 63. № 9. С. 1007.
21. *Аладашвили Д.И., Адамия З.А., Лавдовский К.Г. и др.* // ФТП. 1989. Т. 23. № 2. С. 213.
22. *Шкловский Б.И., Эфрос А.Л.* Электронные свойства легированных полупроводников. М.: Наука, 1979.
23. *Аронзон Б.А., Ковалев Д.Ю., Рыльков В.В.* // ФТП. 2005. Т. 39. № 7. С. 844.
24. *Николаев С.Н., Веденеев А.С., Лузанов В.А. и др.* // РЭ. 2021. Т.66. № 10. С.1024.