

基于静态电滞回线的铁电电容模型^{*}

王龙海 于 军 王耘波 彭 刚 刘 锋 高峻雄

(华中科技大学电子科学与技术系, 武汉 430074)

(2004 年 4 月 27 日收到, 2004 年 7 月 15 日收到修改稿)

根据铁电体的特征电滞回线和微观结构特点, 将构成铁电体的晶胞等效为偶极子, 通过分析偶极子在电场作用下的极化反转机理, 运用统计物理学基本原理建立了新的铁电电容模型. 该模型不仅适用于饱和极化的情况, 对非饱和、电滞回线不对称以及输入电压中途转向等各种情况也都适用. 模型数学表达简洁, 易于结合到实际的电路仿真软件中去, 仿真结果与试验结果符合非常好.

关键词: 铁电电容, 建模, 电滞回线, 偶极子

PACC: 7790, 7780D, 7780, 7755

1. 引 言

近年来, 将铁电电容与其他半导体器件相集成的功能器件已显示出了广阔的前景. 随着集成铁电学的发展, 特别是半导体集成电路设计与仿真的理论和应用已日臻完善的今天, 为了适应集成电路设计与仿真的需要, 建立既反映铁电电容的物理本质, 又能与半导体集成电路设计与仿真相适应的铁电电容模型已显得越来越重要了^[1].

到目前为止, 许多科学工作者对铁电电容的建模进行了大量有益的尝试, 建立的模型主要有两类^[2,3]. 一类是用现有的电容和半导体器件模型构建的电路宏模型, 仅用于电路的仿真^[2-11]. 另一类是用数学表达式表述铁电电容物理特性的物理模型. 具有代表性的有 Miller 等, 假定极化强度与电场的关系可用 \tanh 函数表示^[11,12], 该模型对饱和极化的情况符合较好, 但对非饱和的情况要用参数加以修正. Da 等用简单的二阶分式多项式分布函数拟合^[1], 使得表达式含有太多的参数, 且每一电滞回线有一组参数, 这样使所建模型的通用性和移植性较差. 而基于 Preisach 磁滞回线理论应用于铁电体建立的模型, 没能得到统一、简单的函数表达式, 不利于与电路仿真软件相结合, 对非饱和电滞回线同样符合较差^[13-16]. 分析这些模型存在问题的原因, 除铁电电容自身性能复杂外, 更重要的是在建模过

程中没有全面地从铁电体物理本质出发去分析, 缺少充分的理论依据^[14].

国内许多科学工作者对铁电材料的制备、相变、介电性能、电畴结构、铁电极化子动力学理论、铁电软模等方面进行了大量的研究^[17-24]. 但目前只有少量的宏模型和 $C-V$ 模型报道^[2,7,10,25]. 本文根据铁电体的特征电滞回线和微观结构特点, 将构成铁电体的晶胞等效为偶极子, 通过分析偶极子在电场作用下的极化反转机理, 运用统计物理学基本原理建立了新的铁电电容模型, 该模型不仅适用于饱和极化的情况, 对非饱和、电滞回线不对称以及输入电压中途转向等各种情况也都适用. 模型易于结合到实际的电路仿真软件中去, 仿真结果与试验结果符合非常好.

2. 铁电电容模型

铁电电容一般由铁电薄膜和上、下两电极组成. 因制备工艺、电极材料、衬底等因素的影响, 铁电薄膜多为多晶或外延膜. 在薄膜中存在着晶界、杂质和缺陷等非铁电体成分, 因而铁电电容可看成由两个非铁电介质层和一个铁电层构成, 如图 1 所示.

电容两个电极之间的距离为 $(d+l)$, 外加电场为 E . 铁电层厚度为 l , 宏观场强为 E_f , 极化强度为 P_f , 偶极子产生的电场强度为 E_p . 每一个非铁电介质层与电极相邻, 厚度为 $d/2$, 电场强度为 E_d . 对

^{*} 国家自然科学基金(批准号 60171012)和国家自然科学基金重大研究计划(批准号 90407023)资助的课题.

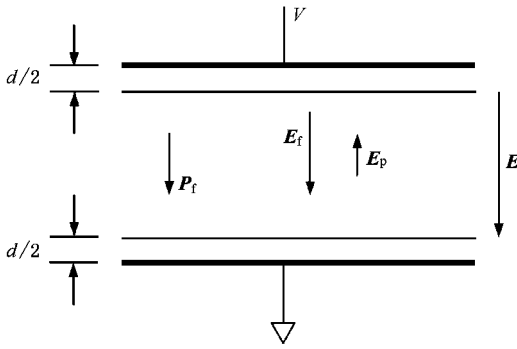


图 1 铁电电容的物理模型示意图

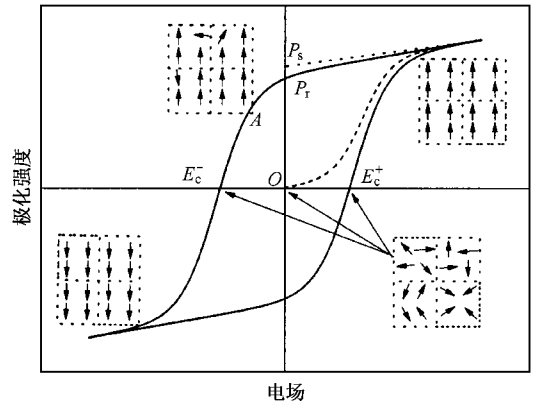


图 2 铁电体电滞回线示意图

于理想的铁电电容, d 为零.

在外加电场作用下,两电极间测得的极化强度显然由两部分组成,即总极化强度为铁电体极化强度 P_f 和非铁电体极化强度 P_d 之和

$$P = P_f + P_d. \quad (1)$$

非铁电体极化强度主要是非铁电体介质的极化,这部分极化强度在铁电电容的极化中处于次要地位,其极化强度与电场的关系可表述为

$$P_d = \alpha E, \quad (2)$$

其中 α 是与极化相关的参数,在这里由实验确定,将在后面第三节讨论.

铁电体部分的极化强度与电场的关系比较复杂,是铁电电容建模的关键.铁电体是具有自发极化,且自发极化可被外电场重新定向的晶体.这种晶体晶胞本身的正负电荷中心不相重合,使晶胞具有极性.由于晶体构造的周期性和重复性,晶胞的固有极性便会沿着同一方向排列整齐,使晶体处于高度极化状态.这种极化状态是在外电场为零时自发建立起来的,称为自发极化.自发极化方向相同的近邻晶胞所组成的小区域称为电畴,分隔相邻电畴的界面称为畴壁.电畴在电场作用下的运动就决定了铁电体的特性,当电场发生周期性变化时,铁电体的极化强度与电场的关系呈现出图 2 所示的电滞回线.

铁电体的这种特点是由其结构所决定的.目前已知的铁电体已超过一百多种,从相变的角度看,主要有有序-有序型和位移型铁电体两类.无论哪一类铁电体,处于铁电相时,结构上总存在正负电荷中心不重合的晶体原胞.如果将晶体原胞的正负电荷中心各等效为一点电荷,则这两个等效的点电荷就构成了一个电偶极子,一个铁电体的晶体原胞就是一个等效的电偶极子.电畴就是极化方向相同的电

偶极子组成的小区.铁电体自发极化在电场作用下的翻转所表现出的电滞回线规律,就是电偶极子在电场作用下的取向和重新取向的运动规律.

当外加电场为 E 时,铁电层的宏观电场 E_f 为^[26]

$$E_f = E - \frac{d}{l} E_d, \quad (3)$$

其中 E_d 为非铁电介质的电场强度.此时铁电层中偶极子除受 E_f 作用外,还受到其他偶极子产生的电场 E_p 的作用.则作用在偶极子上的有效电场为

$$E_e = E_f + E_p = E - \frac{d}{l} E_d + E_p. \quad (4)$$

偶极子在有效电场 E_e 的作用下沿电场方向取向,使偶极子能量最低,处于稳定状态.当外电场大于等于饱和极化电场 E_s 时,所有偶极子都沿外电场取向,如图 2 中箭头所示,宏观极化强度最大.当外加电场从 E_m 减小至反方向 E 时,如图 2 中的 A 点,此时偶极子受到的有效电场变化量为

$$\begin{aligned} \Delta E_e &= E_{me} - E_e \\ &= \left(E_m - \frac{d}{l} E_{dm} + E_{pm} \right) - \left(E - \frac{d}{l} E_d + E_p \right). \end{aligned} \quad (5)$$

相应偶极矩为 μ 的偶极子的能量变化为^[27]

$$\begin{aligned} \Delta U &= U_m - U \\ &= -\mu E_m \cos\theta - (-\mu E \cos\theta) \\ &= -\mu (\Delta E_e) \cos\theta. \end{aligned} \quad (6)$$

这说明当外加电场从某一方向减小时,偶极子的能量将增加,使偶极子处于不稳定状态.为了使偶极子能量减小,重新处于稳定状态,从(6)式可知只有改变偶极子与电场的夹角 θ .(6)式还说明,偶极子的取向不同,在有效电场变化相同时,其能量变

化是不相同的. 只有增加的能量大于等于偶极子转向所需的能量时, 偶极子才会发生转向, 使宏观极化强度减小. 所以此时的宏观极化强度就是在某一方向电场为最大值 E_m 时, 取向一致的偶极子产生的极化强度 P_m 减去那些转向了的偶极子产生的极化强度 P_t , 即

$$P_f = P_m - P_t. \quad (7)$$

根据统计物理学的基本原理, 若偶极子在变化的有效电场作用下, 方向发生变化的概率函数为 $f(E_e)$. 则对于偶极子总数为 N 的铁电体, 在有效电场 $E_e \rightarrow E_e + dE_e$ 的范围内, 发生转向的偶极子数为

$$dN = Nf(E_e) dE_e, \quad (8)$$

则在 A 点, 当外加电场从 E_m 减小至反方向 E 时, 方向发生变化的偶极子数为

$$n = \int_{\Delta E_e} Nf(E_e) dE_e. \quad (9)$$

若铁电体中偶极子对宏观极化强度的贡献是相同的. 偶极子在某一方向电场为最大值 E_m 时, 极化强度为 P_m , 反转到另一方向可能达到的最大值为饱和极化强度 P_{sat} . 这一过程中, 每一偶极子的极化强

度变化量为 $dP = (P_m + P_{sat})/N$. 则方向发生变化了的偶极子所产生的宏观极化强度就是

$$P_t = n(P_m + P_{sat})/N = (P_m + P_{sat}) \int_{\Delta E_e} f(E_e) dE_e. \quad (10)$$

将上式代入(7)式, 再由(1)(2)式就可得到铁电电容极化强度与电场的关系

$$P = P_m - (P_m + P_{sat}) \int_{\Delta E_e} f(E_e) dE_e + \alpha E. \quad (11)$$

3. 概率函数及参数的提取

偶极子在外电场发生变化时转向的概率函数, 理论上可通过能量的变化推导出函数表达式. 但从(5)(6)式可知, 偶极子能量的变化虽然主要由外电场决定, 但与具体的材料、偶极子自身的极化等因素有关, 所以理论推导有一定的困难. 实际中考虑到有效电场的变化与外电场的变化有一一对应的关系, 偶极子在变化的有效电场作用下, 方向发生变化

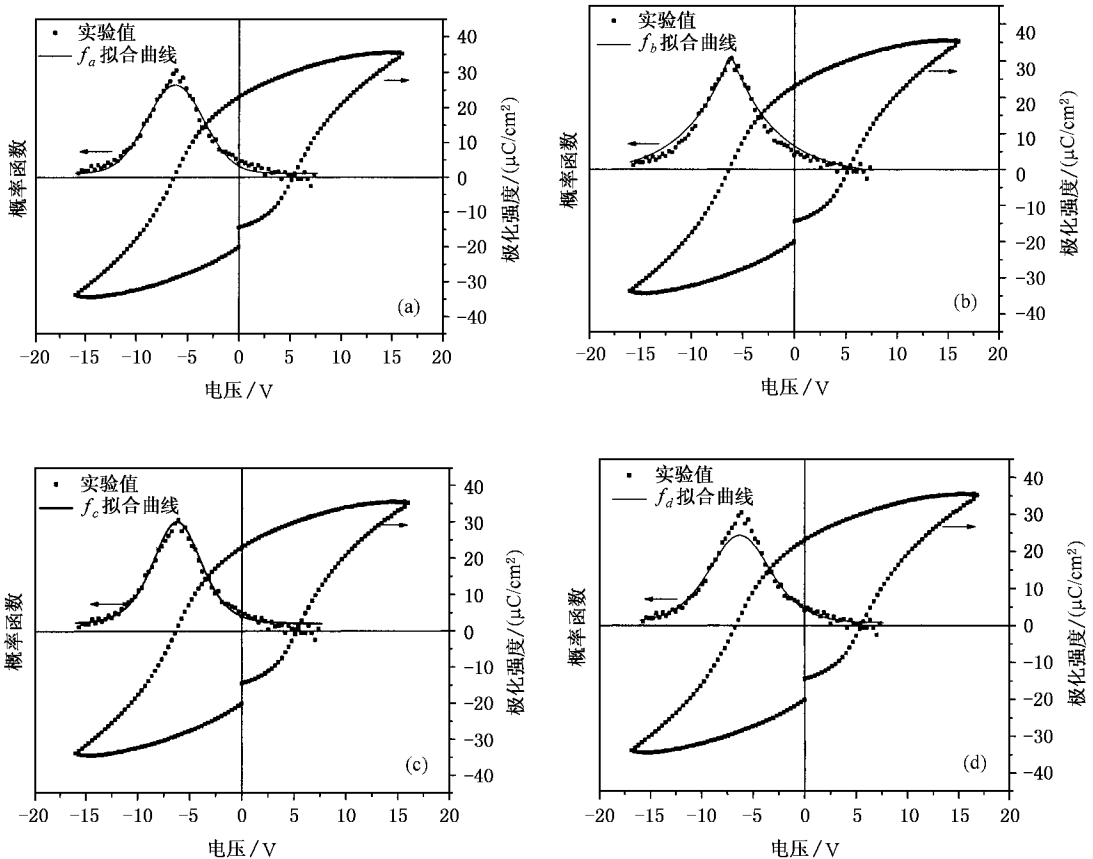


图 3 极化强度对电场的微分实验值(点)与概率函数的拟合曲线(线)

的概率函数 $f(E_c)$ 也就与外电场相对应. (11) 式可写为

$$P = P_m - (P_m + P_{sat}) \int_{\Delta E} f(E) dE + \alpha E. \quad (12)$$

将上式对电场微分得

$$\frac{dP}{dE} = -(P_m + P_{sat}) f(E) + \alpha, \quad (13)$$

则

$$f(E) = \alpha - \frac{1}{P_m + P_{sat}} \frac{dP}{dE}. \quad (14)$$

上式表明, 概率函数可通过极化强度与电场的变化由实验确定. 先从实验中得到极化强度对电场的微分值, 再通过拟合得到具体的函数表达式. 图 3 为用 Sol-Gel 法在 Pt/Ti/SiO₂/Si(100) 上制备 PbZr_{0.30}Ti_{0.70}O₃/PT 薄膜样品测得的饱和电滞回线, 用电压从正的最大值降到负的最大值时测量的极化强度值, 获得概率函数曲线. 根据得到的曲线形状, 选用不同的函数进行拟合, 结果如图 3 所示.

图 3 中所用的函数分别为

$$(a) \quad f_a = Ae^{-\alpha(x+x_c)^2} + C, \quad (15)$$

$$(b) \quad f_b = Ae^{-\sigma|x+x_c|} + C, \quad (16)$$

$$(c) \quad f_c = Ae^{\alpha(x+x_c)} [1 + e^{\alpha(x+x_c)}] + C, \quad (17)$$

$$(d) \quad f_d = A / \{ \cosh[\alpha(x+x_c)] \}^2 + C, \quad (18)$$

式中 A, σ, C, x_c 为拟合参数, 其中 A 为函数的幅值、 σ 为半宽度对应的参数、 C 为与 x 轴的距离、 x_c 为函数峰值时的 x 值, 不同的函数在拟合时参数值可能不同.

从图中可见, 与实验结果符合较好的函数有 (b)(c). 考虑到与实验结果符合, 且使最终模型的表达式简洁, 以便于与电路仿真软件相结合, 提高电路设计与仿真的效率. 在这里使用的概率函数为 f_c . 将 (17) 式代入 (12) 式中, 最后得到极化强度与电场的关系为

$$P = P_m - (P_m + P_{sat}) \frac{1}{1 + e^{\alpha(E+E_c)}} + \alpha E. \quad (19)$$

对于电场增加和减小的情况 (19) 式可分别写为

$$P^\uparrow = -P_m^- + (P_m^- + P_{sat}^+) \frac{1}{1 + e^{\beta^+(E_c^- - E)}} + \alpha^+ E, \quad (20)$$

$$P^\downarrow = P_m^+ - (P_m^+ + P_{sat}^-) \frac{1}{1 + e^{\beta^-(E_c^+ + E)}} + \alpha^- E, \quad (21)$$

其中 P_m^+, P_{sat}^+, E_c^+ 分别为铁电体正方向极化强度的最大值、饱和极化强度和矫顽场强, P_m^-, P_{sat}^-, E_c^- 分别为铁电体负方向极化强度的最大值、饱和极化强度和矫顽场强. 在饱和情况下 P_m^+ 等于 P_{sat}^+, P_m^- 等于 P_{sat}^- , 对应的参数 $\alpha^+, \alpha^-, \beta^+, \beta^-$ 在实验测得电场为最大值 E_m 时的极化强度 P_{max} 、饱和极化强度 P_{sat} 、剩余极化强度 P_r 和矫顽场强 E_c 的基础上, 由下式确定:

$$\alpha^+ = \frac{P_{max}^+ - P_{sat}^+}{E_m^+}, \quad \alpha^- = \frac{P_{max}^- - P_{sat}^-}{E_m^-},$$

$$\beta^+ = \frac{\ln\left(\frac{P_{sat}^+ + P_r^-}{P_m^- - P_r^-}\right)}{E_c^+}, \quad \beta^- = \frac{\ln\left(\frac{P_{sat}^- + P_r^+}{P_m^+ - P_r^+}\right)}{E_c^-}, \quad (22)$$

其中 P_r^+, P_r^- 分别是正负方向的剩余极化强度, 在电滞回线对称的情况下 α^+ 等于 α^-, β^+ 等于 β^- .

4. 模型验证结果与讨论

为了验证所建立的模型, 用 Sol-Gel 法在 PT/Ti/SiO₂/Si(100) 上制备了 PT/PbZr_{0.30}Ti_{0.70}O₃/PT, PbZr_{0.30}Ti_{0.70}O₃/PT 和 PbZr_{0.30}Ti_{0.70}O₃ 不同结构的薄膜样品, 膜厚约 1 μ m. 电滞回线用 RT66A 测量, 用 PbZr_{0.30}Ti_{0.70}O₃/PT 结构的样品同时测量饱和与非饱和电滞回线.

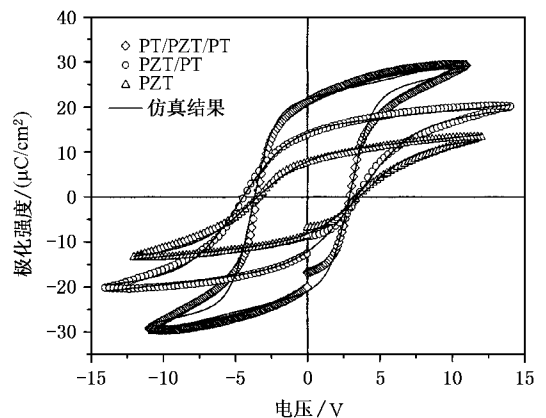


图 4 不同结构薄膜样品的电滞回线及仿真结果

图 4 为上述不同结构薄膜样品的电滞回线及仿真结果, 各样品的仿真结果与实验值均符合得非常好. 图 5 为具有 PbZr_{0.30}Ti_{0.70}O₃/PT 结构的另一个样品在不同电压下测得的饱和与非饱和电滞回线及仿真结果, 结果显示不仅饱和时仿真结果与实验值符

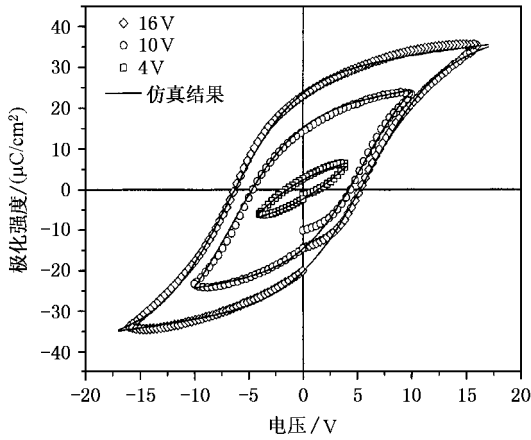


图5 不同电压下测得的电滞回线和仿真结果

合得很好,对于非饱和时仿真结果与实验值也同样符合得很好.在实验中因电极势垒、衬底等因素的影响,可导致电滞回线严重的不对称,图6为华中科技大学物理系柳擎在 $\text{PbZr}_{0.50}\text{Ti}_{0.50}\text{O}_3/\text{ITO}/\text{SiO}_2$ 样品上测得的非对称电滞回线,使用所建的模型也能很好的进行仿真.铁电电容在实际应用中可能会出现输入电压中途转向的情况,用所建的模型也可以很好的仿真,如图7所示.

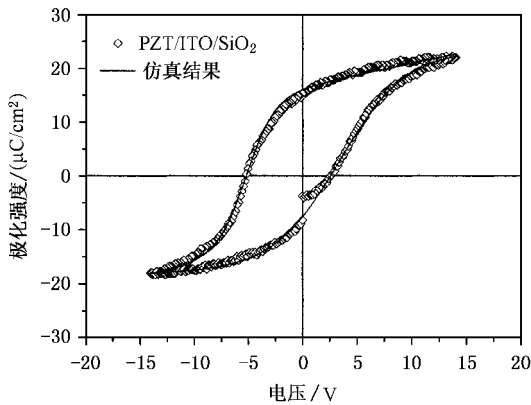


图6 非对称电滞回线及仿真结果

从以上仿真结果可知,建模时使用的概率函数虽然是根据某一实验结果提取的,但对不同的实验结果均符合非常好,说明模型具有普适性.这是因为本模型的核心是建立在偶极子在电场作用下极化转向规律基础上的,即当外加电场从某一方向减小时,偶极子的能量将增加,使偶极子处于不稳定状态.当增加的能量大于等于偶极子转向所需的能量时,偶极子取向就会发生改变,使宏观极化强度发生相应的改变.偶极子在外电场作用下极化转向规律

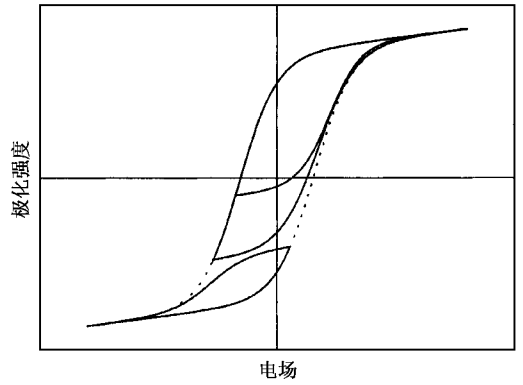


图7 输入电压中途转向的电滞回线仿真示意图

是可以从实验中得出,并能被不同的实验结果验证.在非饱和情况下,外加电场的变化小于饱和的情况,偶极子的能量变化就小于饱和情况.这样使得能量的变化达不到所有偶极子转向所需的能量,就会有部分偶极子没有参与极化转向的运动.所以在饱和与非饱和的情况下的区别只是参与极化转向的偶极子数目不同,但其在电场作用下极化转向规律是相同的.对于输入电压中途转向的情况也是如此.至于非对称的情况,主要是因为电极势垒、衬底等因素使铁电体内部在不同方向上的有效电场变化不尽相同.从而使偶极子在外部分对称变化电场的作用下,其能量的变化并不相同.因而,偶极子在不同方向上极化转向也不相同,表现为宏观的极化强度的变化自然是非对称的.但对于每一偶极子自身而言,其极化转向的规律是相同的.所以无论对于饱和情况,还是非饱和、非对称的情况,本模型均适用.

5. 结 论

根据铁电体的特征电滞回线和微观结构特点,将构成铁电体的晶胞等效为偶极子.通过分析偶极子在电场作用下的极化反转机理、运用统计物理学基本原理建立了新的铁电电容模型.从实验结果中提取偶极子在外电场作用下极化转向的概率函数及模型参数,得到的模型被不同的实验结果验证,提高了模型的可靠性.该模型不仅适用于饱和极化的情况,对非饱和、电滞回线不对称以及输入电压中途转向等各种情况也都适用.模型易于结合到实际的电路仿真软件中去,仿真结果与试验结果符合非常好.

华中科技大学物理系柳擎为本文提供了非对称电滞回线的实验数据,在此表示衷心感谢.

- [1] Du X H *et al* 2002 *IEEE Circuits & Devices Magazine* **12** 10
- [2] Ren T L , Zhang W Q , Li C X , Chen H Y , Zhu J and Liu L T 2001 *Acta Electronica Sinica* **29** 1135
- [3] Sheikholeslami A , Gulak P G 1997 *IEEE Trans. UFFC* **44** 917
- [4] Sheikholeslami A , Gulak P G , Takauchi H , Tamura H , Yoshioka H and Tamura T 2000 *IEEE Trans. UFFC* **47** 784
- [5] Sheikholeslami A , Gulak P G , Transient 1996 *IEEE Trans. UFFC* **43** 450
- [6] Jiang B , Lee J C , Zurcher P and Jones R E 1997 *Integrat. Ferroelect* **16** 199
- [7] Liu M , Kang J F , Zhang J H , Liu X Y , Han R Q 2003 *Microelectronic Engineering* **66** 813
- [8] Rep D B A and Prins M W J 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 7923
- [9] Dunn D E 1994 *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* **41** 360
- [10] Wang A R , Tang T G , Cheng X and Tang X Y 2001 *Microelectronics* **31** 414
- [11] Miller S L , Nasby R D , Schwank J R , Rodgers M S and Dressendorfer P V 1990 *J. Appl. Phys.* **68** 6463
- [12] Miller S L , Nasby R D , Schwank J R and Rodgers M S 1991 *J. Appl. Phys.* **70** 2849
- [13] Jiang B , Zurcher P , Jones R E , Gillespie S J and Lee J C 1997 *Symposium on VLSI Technology* 141
- [14] Bartic A T , Wouters D J and Maes H E 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 3420
- [15] Vincent Meyer , Jean-Michel Sallese , Pierre Fazan , Delphine Bard , Francois Pecheux 2003 *Solid-State Electronics* **47** 1479
- [16] Schultz I , Goebel H and Ullmann M 2001 *Electronics Letters* **37** 1216
- [17] Wang H *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 981 (in Chinese) [王 华 等 2001 物理学报 **50** 981]
- [18] Liu P *et al* 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 1727 (in Chinese) [刘 鹏 等 1998 物理学报 **47** 1727]
- [19] Xu Z *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1787 (in Chinese) [徐 卓 等 2001 物理学报 **50** 1787]
- [20] Zhao M L *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 420 (in Chinese) [赵明 磊等 2002 物理学报 **51** 420]
- [21] Zeng H R *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1787 (in Chinese) [曾华 荣等 2003 物理学报 **52** 1787]
- [22] Yao J H , Zhang G Y , Yan B X , Chen Y H 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1783
- [23] Li Z Q *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2477 (in Chinese) [李智强 等 2001 物理学报 **50** 2477]
- [24] Li Z Q *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1581 (in Chinese) [李智强 等 2002 物理学报 **51** 1581]
- [25] Chen Z and Tang T A 1995 *4th International Conference on Solid-State and Integrated Circuit Technolog* 281
- [26] Tagantseva A K and Stolichnov I A 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 1326
- [27] Zhang L Y *et al* 1991 *Dielectric Physics* (Chapter One) (Xi 'an :Xi ' an Jiaotong University Publishing House) p30

A model of ferroelectric capacitors based on hysteresis loop^{*}

Wang Long-Hai Yu Jun Wang Yun-Bo Peng Gang Liu Feng Gao Jun-Xiong

(Department of Electronic Science and Technology , Huazhong University of Science and Technology , Wuhan 430074 , China)

(Received 27 April 2004 ; revised manuscript received 15 July 2004)

Abstract

Based on the characteristic of ferroelectric microstructure , a crystal cell of ferroelectric is regarded as a dipole . Analysis of the switching property of dipole in the electric filed is made . According to the statistic principle , different distribution functions are used to fit the probability of dipole switching . A model based on hysteresis loop is developed . Experimental data on PZT show good agreement with the model for various loops , and the model is easily linked to simulative software of circuit for either memory or analog design application .

Keywords : ferroelectric capacitor , model , hysteresis loop , dipole

PACC : 7790 , 7780D , 7780 , 7755

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60171012) , and the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 90407023) .