РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКОМ СЛОЕ С ПРОВОДИМОСТЬЮ ПО ПОСТОЯННОМУ ТОКУ

О.Г.Вендик, Л.Т.Тер-Мартиросян

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет, 197376, Санкт-Петербург, Россия
(Поступила в Редакцию 25 января 1995 г.)

Распределение динамической поляризации в сегнетоэлектрическом слое, расположенном между металлическими электродами и обладающем проводимостью по постоянному току, описывается дифференциальным уравнением четвертого порядка. Для решения его необходимо использовать так называемое естественное условие $D + \varkappa(dD/dx) = 0$ на границе между сегнетоэлектрическим слоем и электродом; однако значение $\varkappa$ в общем случае неизвестно. Численные оценки для монокристаллического титаната стронция приводят к оценке значения $\varkappa \sim 10^3$ m; при этом проявление размерного эффекта практически не отличается от случая отсутствия проводимости в сегнетоэлектрическом слое.

Анализ размерных эффектов в тонких сегнетоэлектрических слоях обычно выполняется при упрощающем предположении об отсутствии сквозной проводимости в исследуемом материале [1,2], т.е. сегнетоэлектрик рассматривается как идеальный изолятор.

Целью настоящей работы является анализ размерных эффектов с учетом конечной проводимости сегнетоэлектрика в плоской структуре (типа «сэндвич»), когда векторы, характеризующие электрическое поле, перпендикулярны к электродам. При этом используется система уравнений, описывающих распределение поляризации и транспорт заряда в сегнетоэлектрике [3–5].

Как известно, частотная зависимость проводимости полупроводников определяется средним временем релаксации импульса τ (см., например, [6]). Будем далее предполагать, что на рабочей частоте выполняется условие $\omega\tau \ll 1$, так что допустимо использование низкочастотных характеристик материала.

1. Распределение поляризации в слое

Рассмотрим структуру с нормальной к границе диэлектрического слоя поляризацией. Векторы, характеризующие электрическое поле, направлены по оси x, нормальной к границе слоя, и зависят только от координаты x. При этом дифференциальное уравнение для поляризации в случае слабых переменных во времени электрических воздействий и при отсутствии статических полей имеет вид [2]

$$2\lambda_1 \frac{d^2 P_\sim}{dx^2} - P_\sim = -\frac{\chi}{\varepsilon} D_\sim, \qquad (1)$$

где $P_\sim$, $D_\sim$ — нормальные к границе сегнетоэлектрического слоя (т. е. нормальные к электроду) компоненты поляризации и электрической индукции, λ_1 — корреляционный параметр, χ и $\varepsilon = \chi + 1$ — диэлектрическая восприимчивость и проницаемость объемного образца рассматриваемого сегнетоэлектрического материала при однородной поляризации.

Далее, предположим, что в сегнетоэлектрике имеются свободные носители заряда одного знака, причем их концентрация n_0 мала, так что газ носителей заряда можно считать невырожденным; тогда для подвижности μ и коэффициента диффузии α_D носителей заряда можно использовать известное соотношение [6]

$$(\alpha_D/\mu) = k_\mathrm{B}T/|e|.$$

Подвижность μ свободных носителей заряда связана с временем релаксации импульса τ соотношением $\mu = |e|\tau/m^*$, где m^* — эффективная масса носителя заряда [7]. Принимая $\mu \sim 10^{-5}\,\mathrm{m^2/V\cdot s}$ [3], находим, что даже при $m^* \sim 100m_e$, где m_e — масса свободного электрона, $\tau \sim 10^{-14}$ s, так что даже на частоте ~ 100 GHz $\omega\tau \ll 1$.

Плотность полного тока в сегнетоэлектрике, линеаризованная по отношению к малым переменным составляющим, может быть записана в виде [5]

$$j_\sim = |e|\mu n_0 E_\sim - \alpha_D \frac{d^2 D_\sim}{dx^2} + i\omega D_\sim, \tag{2}$$

где ω — круговая частота; в соответствии с постановкой задачи переменная плотность полного тока $j_\sim$ не зависит от координаты x.

Комбинируя (1) и (2), получаем дифференциальное уравнение четвертого порядка для поляризации в сегнетоэлектрике

$$\frac{d^4 P_\sim}{dx^4} - (a + ib)\frac{d^2 P_\sim}{dx^2} + (c + id)P_\sim = Z, \tag{3}$$

где

$$a = m^2 + \frac{\sigma}{\varepsilon_0 \alpha_D}, \tag{4}$$

$$m = (2\lambda_1)^{-1/2}, \tag{5}$$

$\sigma = |e|n_0\mu$ — проводимость сегнетоэлектрика по постоянному току,

$$b = \frac{\omega}{\alpha_D}, \tag{6}$$

$$c = \frac{\sigma}{2\lambda_1 \varepsilon_0 \varepsilon \alpha_D}, \tag{7}$$

$$d = \frac{\omega}{2\lambda_1 \alpha_D}, \tag{8}$$

$$Z = \frac{\chi j_\sim}{2\lambda_1 \varepsilon \alpha_D}. \tag{9}$$

Помещая начало координат в середине сегнетоэлектрического слоя и учитывая симметрию задачи относительно плоскости $x = 0$, общее решение неоднородного уравнения (3) можно записать в виде

$$P_\sim = A_1 \operatorname{ch} m_1 x + A_2 \operatorname{ch} m_2 x + W, \tag{10}$$

где

$$m_{1,2} = \sqrt{\frac{a+ib}{2} \pm \sqrt{\frac{(a+ib)^2}{4} - (c+id)}} \tag{11}$$

(два других корня отличаются от m_1 и m_2 только знаком и с учетом симметрии задачи могут быть отброшены),

$$W = \frac{Z}{c+id}.$$

Эффективную диэлектрическую проницаемость сегнетоэлектрического слоя найдем, исходя из разности потенциалов на электродах [2]

$$\varepsilon_{\text{ef}} = \frac{\varepsilon - i\frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0}}{1 + \frac{\varepsilon_0 v_1}{m_1 h}\frac{A_1}{W}\operatorname{sh} m_1 h + \frac{\varepsilon_0 v_2}{m_2 h}\frac{A_2}{W}\operatorname{sh} m_2 h}, \tag{12}$$

где мнимая часть характеризует диэлектрические потери,

$$v_1 = \frac{1}{\varepsilon_0}\left(1 - \varepsilon\frac{m_1^2}{m^2}\right), \tag{13}$$

$$v_2 = \frac{1}{\varepsilon_0}\left(1 - \varepsilon\frac{m_2^2}{m^2}\right). \tag{14}$$

Для определения постоянных A_1 и A_2 следует воспользоваться условиями на границе ($x = h$) между сегнетоэлектриком и электродом (ввиду симметрии задачи ограничимся областью $x > 0$).

В рассматриваемой задаче ситуация осложнена наличием свободных носителей заряда в сегнетоэлектрике, так что в его объеме $dD/dx \neq 0$; при этом значение индукции на границе сегнетоэлектрического слоя неизвестно и может быть определено лишь в результате решения задачи. В этих условиях целесообразно использовать так называемое естественное граничное условие [5,8]

$$D_\sim + \varkappa\frac{dD_\sim}{dx} = 0. \tag{15}$$

Кроме того, как и в случае отсутствия проводимости в сегнетоэлектрике [2], примем при $x = h$

$$P_\sim = 0. \tag{16}$$

Заметим, что значение коэффициента $\varkappa$ определяется условиями задачи и может быть найдено, если известны значения индукции $D_\sim(h)$ и ее производной по координате $dD_\sim/dx$ на границе сегнетоэлектрического слоя и электрода; но для определения $D_\sim$ и $dD_\sim/dx$ необходимо знать значение коэффициента $\varkappa$.

Таким образом, обсуждаемая задача с выбранными граничными условиями не может быть доведена до численных значений; однако в некоторых случаях можно использовать полученное решение для оценки $\varkappa$.

Выражая $D_\sim$ через $P_\sim$ с помощью (1) и подставляя в (15), а также (10) в (15) и (16), получаем уравнения для определения постоянных A_1 и A_2. Решая эти уравнения, находим

$$A_1 = \frac{\left[\varkappa\left(1 - \frac{m_2^2}{m^2}\right)\mathrm{th}m_2h - \frac{m_2}{m^2}\right]m_2W}{S\mathrm{ch}m_1h}, \tag{17}$$

$$A_2 = -\frac{\left[\varkappa\left(1 - \frac{m_2^2}{m^2}\right)\mathrm{th}m_2h - \frac{m_2}{m^2}\right]m_2W}{S\mathrm{ch}m_2h} - \frac{W}{\mathrm{ch}m_2h}, \tag{18}$$

где

$$S = \left(1 - \frac{m_1^2}{m^2}\right)(1 + \varkappa m_1\mathrm{th}m_1h) - \left(1 - \frac{m_2^2}{m^2}\right)(1 + \varkappa m_2\mathrm{th}m_2h). \tag{19}$$

2. Численные оценки

В качестве сегнетоэлектрического материала, находящегося в параэлектрической фазе, будем рассматривать титанат стронция. Тогда $\lambda_1 \simeq 11.5 \cdot 10^{-20}\,\mathrm{m}^2$ [9]; полагая $T = 77$ K, примем концентрацию и подвижность свободных носителей заряда равными соответственно $n_0 \sim 10^{13}\,\mathrm{m}^{-3}$, $\mu \sim 10^{-5}\,\mathrm{m}^2/\mathrm{V}\cdot\mathrm{s}$, что соответствует высококачественному монокристаллу титаната стронция [3]. При выбранном значении температуры $\varepsilon \simeq 2000$ [5]. Тогда коэффициент диффузии $\alpha_D = \mu k_\mathrm{B}T/|e| \simeq 0.66 \cdot 10^{-7}\,\mathrm{m}^2/\mathrm{s}$, $n_0|e|^2/\varepsilon_0 k_\mathrm{B}T \simeq 2.7 \cdot 10^7\,\mathrm{m}^{-2}$, $m^2 \simeq 0.43 \cdot 10^{19}\,\mathrm{m}^{-2}$. Следовательно, в выражении (4) для коэффициента a первое слагаемое на одиннадцать порядков больше второго, так что $a \simeq m^2 \simeq 0.43 \cdot 10^{19}\,\mathrm{m}^{-2}$.

Пусть, наконец, рабочая частота равна 10^{11} Hz. С помощью выражений (6)–(8) находим $b \simeq 0.95 \cdot 10^{19}\,\mathrm{m}^{-2}$, $c \simeq 5.9 \cdot 10^{22}\,\mathrm{m}^{-4}$, $d \simeq 4.1 \times 10^{38}\,\mathrm{m}^{-4}$.

Введем обозначение $t = b/a$, тогда $t \simeq 2.2$. С помощью (4), (6), (8) при $a \simeq m^2$ находим $d \simeq ab = a^2t$. Используя (11) и учитывая, что $c/a^2 \simeq 3.3 \cdot 10^{-15} \ll 1$, получаем

$$m_1 \simeq m, \tag{20}$$

$$m_2 \simeq \frac{1 + i}{\sqrt{2}} m\sqrt{t}. \tag{21}$$

Далее примем во внимание, что обычно в СВЧ-приборах толщина сегнетоэлектрического слоя более $0.2\,\mu\mathrm{m}$, т. е. $h > 10^{-7}$ m. Используя (20), (21), легко убедиться, что в этом случае

$$\mathrm{th}m_1h \simeq 1, \tag{22}$$

$$\mathrm{th}m_2h \simeq 1. \tag{23}$$

Используя приведенные выше численные значения параметров, можно также найти, что в (12) на частотах выше 1 kHz $(\sigma/\omega\varepsilon_0) \ll \varepsilon$, т. е. вклад сквозной проводимости в потери пренебрежимо мал.

Из (4) легко найти концентрацию n_0 свободных носителей заряда в сегнетоэлектрике, при которой второе слагаемое в этом выражении соизмеримо с первым. Равенство $m^2 = |e|^2 n_0/\varepsilon_0 k_B T$ при $T = 77$ K имеет место при $n_0 \simeq 1.6 \cdot 10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}$. Следовательно, при $n_0 \lesssim 10^{21}\,\mathrm{m}^{-3}$ полученные выше соотношения справедливы. В диэлектрических материалах концентрация свободных носителей заряда значительно меньше, так что соотношения (20) и (21) выполняются с высокой точностью.

Используем полученные результаты для оценки коэффициента $\varkappa$. Прежде всего заметим, что при отсутствии сквозной проводимости в сегнетоэлектрике $(dD_\sim/dx) = 0$, а следовательно, $\varkappa \to \infty$. В рассматриваемом случае концентрация свободных носителей заряда n_0 и соответственно сквозная проводимость σ столь малы, что координатные зависимости электрической индукции, поляризации и напряженности электрического поля в конденсаторной структуре не должны заметно отличаться от соответствующих зависимостей при $\sigma = 0$, так что должно выполняться условие

$$\varkappa \gg 1\,\mathrm{m}. \tag{24}$$

Подставляя (17), (18) и (19) в (10) и сравнивая полученное выражение с координатной зависимостью переменной поляризации при $\sigma = 0$ [2] $P_\sim = (\chi D_\sim/\varepsilon)(1 - \mathrm{ch}\,mx/\mathrm{ch}\,mh)$, находим, что эти выражения приблизительно равны, если

$$\varkappa \left|1 - \frac{m_1^2}{m^2}\right| |m_1| \ll 1 \tag{25}$$

и

$$\varkappa |m_2| \gg 1; \tag{26}$$

последнее неравенство при выбранных значениях параметров заведомо выполняется. Анализ формулы (11) показывает, что $\left|1 - m_1^2/m^2\right| \simeq$ $\simeq 0.4c/a^2$. Тогда с учетом соотношений (4), (5) и (7) и $a^2 \simeq m$ условие (25) можно привести к виду

$$\varkappa \ll 2.5 \frac{\varepsilon_0 \varepsilon k_\mathrm{B} T}{\sqrt{2\lambda_1}\,|e|^2\, n_0}. \tag{27}$$

При выбранных значениях параметров условие (27) принимает вид $\varkappa \ll 4 \cdot 10^5$ m. С учетом условия (24) получаем $1 \ll \varkappa \ll 4 \cdot 10^5$. Последнее соотношение может быть выполнено, если $\varkappa \sim 10^3$ m. С уменьшением n_0 верхняя граница в последнем неравенстве растет, и, следовательно, растет $\varkappa$; при $n_0 \to 0$ $\varkappa \to \infty$, как и должно быть.

Таким образом, решение задачи о размерном эффекте в конденсаторной структуре с металлическими электродами при наличии сквозной проводимости сегнетоэлектрического материала позволило оценить значение коэффициента $\varkappa$ в случае высококачественного монокристаллического титаната стронция при 77 K. При этом проявление размерного эффекта практически не отличается от случая отсутствия проводимости в сегнетоэлектрическом материале, так что [2]

$$\varepsilon_{\text{ef}} \simeq \frac{\varepsilon}{1+\chi/mh}. \tag{28}$$

С достаточным основанием можно предположить, что в случае электродов из высокотемпературного сверхпроводника проявление размерного эффекта также практически не будет отличаться от случая отсутствия сквозной проводимости сегнетоэлектрического материала, так что [2]

$$\varepsilon_{\text{ef}} \simeq \frac{\varepsilon}{1+\sqrt{\varepsilon}/mh}. \tag{29}$$

Итак, получены выражения, описывающие распределение поля в конденсаторной структуре типа «сэндвич» с электродами из нормального металла и эффективную диэлектрическую проницаемость сегнетоэлектрического материала при наличии в нем сквозной проводимости.

Показано, что при концентрации $n_0 \ll 10^{24}\,\text{m}^{-3}$ свободных носителей заряда в диэлектрике и при достаточно большой толщине $2h \gtrsim 200$ nm слоя диэлектрика полученные выражения значительно упрощаются; вместе с тем для численных оценок необходимо знать значение коэффициента $\varkappa$, определяющего граничное условие для индукции.

Для случая металлических электродов получена оценка значения коэффициента $\varkappa$ при 77 K; установлено, что $\varkappa \sim 10^3$ m и возрастает с уменьшением n_0.

Найдено также, что при выбранных значениях параметров на частотах выше 1 kHz вклад сквозной проводимости в потери в конденсаторной структуре пренебрежимо мал.

Работа выполнена в рамках Государственной программы «Высокотемпературная сверхпроводимость» (проект № 94051).

Список литературы

[1] Вендик О.Г., Мироненко И.Г., Тер-Мартиросян Л.Т. ФТТ **26**, *10*, 3094 (1984).
[2] Вендик О.Г., Тер-Мартиросян Л.Т. ФТТ **36**, *11*, 3343 (1994).
[3] Дедык А.И., Лоос Г.Д., Павловская М.В., Тер-Мартиросян Л.Т. ФТТ **35**, *11*, 3172 (1993).
[4] Vendik O.G., Mironenko I.G. Ferroelectrics **9**, *1*, 45 (1975).
[5] Сегнетоэлектрики в технике СВЧ / Под ред. О.Г.Вендика. М. (1979). 272 с.
[6] Бонч-Бруевич В.Л., Калашников С.Г. Физика полупроводников. М. (1977). 672 с.
[7] Киреев П.С. Физика полупроводников. М. (1969). 590 с.
[8] Дудкевич В.П., Синдеев Ю.Г., Фесенко Е.Г. Изв Сев.-Кавк. науч. центра высш. шк. Естеств. науки, *2*, 30 (1979).
[9] Вендик О.Г., Мироненко И.Г. ФТТ **16**, *11*, 3445 (1974).