

Частотная зависимость коэрцитивного поля и внутреннего поля смещения в тонких сегнетоэлектрических пленках

© А.С. Сидоркин, Л.П. Нестеренко, С.В. Рябцев, А.А. Сидоркин

Воронежский государственный университет,
Воронеж, Россия

E-mail: sidorkin@dom.vsu.ru

В широком температурном интервале экспериментально исследованы зависимости коэрцитивного поля и внутреннего поля смещения от частоты переключающего поля в тонких пленках цирконата-титаната свинца и титаната свинца. Показано, что с ростом частоты в указанных пленках наблюдается рост как коэрцитивного поля, так и поля смещения, скорость которого зависит от температуры и используемой подложки.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 07-02-00584).

PACS: 77.55.+f, 77.80.Fm, 77.80.Dj

1. Введение

Сегнетоэлектрические материалы и, в особенности, тонкие сегнетоэлектрические пленки широко используются в различных устройствах микроэлектроники. Значительная часть их практического применения непосредственно связана с возможностью переключения спонтанной поляризации внешним электрическим полем. Основные параметры переключения (остаточная поляризация, коэрцитивное поле) существенно зависят от условий измерения [1–4]. Кроме того, в тонких пленках существенное влияние на процессы переключения оказывает внутреннее поле смещения, связанное с несимметричностью исследуемой системы сегнетоэлектрический материал–подложка относительно полярной оси [5]. В связи с этим в настоящей работе исследуется влияние условий переключения, в частности частоты переключающего поля, на коэрцитивное поле и внутреннее поле смещения в тонких пленках цирконата-титаната свинца (ЦТС) и титаната свинца.

2. Получение пленок цирконата-титаната свинца и титаната свинца

Пленки были приготовлены при помощи золь-гель-метода. Для синтеза пленок ЦТС использовались растворы ацетата свинца $\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, *n*-бутоксид титана и циркония $\text{Ti}(\text{OC}_4\text{H}_9)_4$, $\text{Zr}(\text{OC}_4\text{H}_9)_4$ с молярным соотношением компонентов $\text{Pb}:\text{Ti}:\text{Zr} = 1.25:0.5:0.5$. Приготовление рабочего раствора и получение пленок в процессе высокотемпературного отжига были описаны нами подробно в работах [6,7]. Толщина пленок определялась при помощи электронного микроскопа и составляла 0.1–1 μm. В процессе окончательного высокотемпературного отжига на подложке происходила химическая реакция с образованием перовскитовой

фазы ЦТС. Приготовление рабочего раствора для получения пленок PbTiO_3 происходило аналогично, но без добавления соединения *n*-бутоксид циркония при молярном соотношении $\text{Pb}:\text{Ti} = 1.25:1$.

Микроструктуру поверхности полученных пленок наблюдали при помощи атомно-силового микроскопа Femtoscan-001-Online или электронного микроскопа Scanning Electron Microscope JEOL JSM-6380LV. Пленки являлись поликристаллическими с достаточно однородной поверхностью. Размеры кристаллитов 100–200 nm. Для определения фазового состава пленок использовали рентгеновский дифрактометр ДРОН ($\text{CuK}\alpha$ -излучение). Результаты анализа дифрактограмм показывают, что пленки $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ и PbTiO_3 имели перовскитовую структуру без видимых примесей других фаз.

3. Переключение пленок цирконата-титаната свинца и титаната свинца

Для исследования особенностей динамики поляризации в тонких пленках PbTiO_3 и $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ были изучены зависимости коэрцитивного поля E_c и внутреннего поля смещения E_{bs} от частоты внешнего поля в широком диапазоне температур на различных подложках. Определение указанных величин, а также переключаемой поляризации P_s проводилось по измерениям параметров петель диэлектрического гистерезиса, с помощью модифицированной с учетом особенностей тонких пленок схемы Сойера–Тауэра с компенсацией проводимости.

На рис. 1 и 2 приведены характерные зависимости коэрцитивного поля и петель диэлектрического гистерезиса от частоты для пленок титаната свинца на различных подложках. Аналогично коэрцитивному полю ведет себя зависимость внутреннего поля смещения от частоты. Как показывают проведенные измерения, с ростом частоты внешнего приложенного поля наблюдается практически линейное увеличение E_c и E_{bs} .

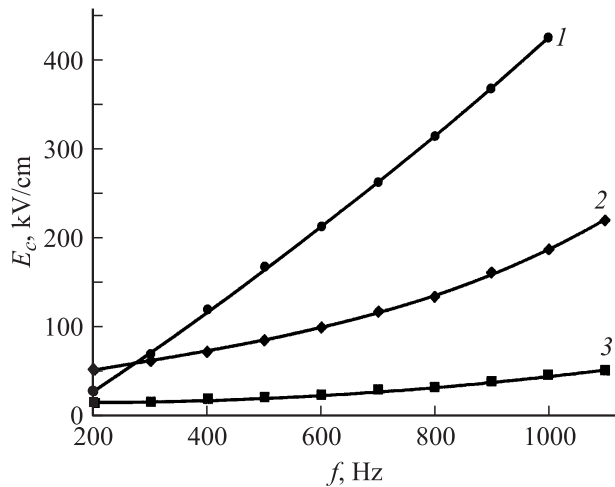


Рис. 1. Зависимости коэрцитивного поля от частоты для пленок PbTiO_3 толщиной $1 \mu\text{m}$ на различных подложках при температуре 460°C . Материал подложки: 1 — поликоровая (Al_2O_3), 2 — кремниевая, 3 — титановая.

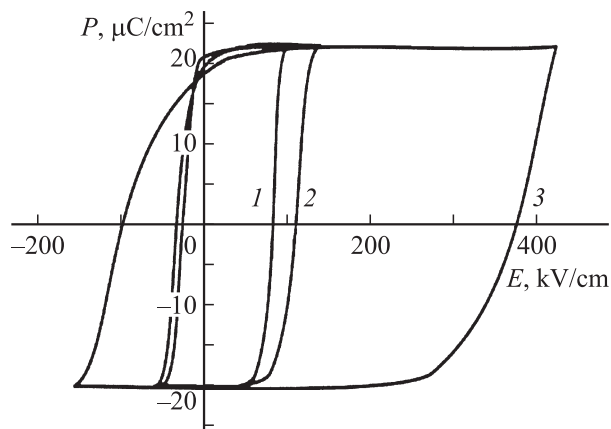


Рис. 2. Вид петель диэлектрического гистерезиса для пленок PbTiO_3 толщиной $1 \mu\text{m}$ на кремниевой подложке при температуре 460°C на различных частотах. f, Hz : 1 — 200, 2 — 500, 3 — 1100.

На рис. 3 и 4 показаны температурные и частотные зависимости коэрцитивного поля и внутреннего поля смещения для пленок ЦТС на поликоровой подложке. Видно, что и сами значения, и скорость роста E_c и E_{bs} с частотой убывают с увеличением температуры.

Толщинные зависимости коэрцитивного поля и внутреннего поля смещения (рис. 5) в пленках титаната свинца на кремниевой подложке демонстрируют увеличение указанных полей на всех частотах с уменьшением толщины пленок.

Примерно линейный рост коэрцитивного поля с частотой переключающего поля можно связать с вязким движением доменных границ. В этом случае скорость движения доменных границ описывается зависимостью

$$v = \mu E, \quad (1)$$

где

$$\mu = \frac{3\delta}{2P_0\Gamma}. \quad (2)$$

Здесь μ — подвижность доменной стенки, δ — ее полуширина, Γ — коэффициент вязкости для движения доменной стенки, P_0 — спонтанная поляризация [8]. Время переключения, которое можно характеризовать временем прорастания домена на полуширину кристаллита $d/2$, определяется соотношением

$$t = \frac{d}{2v(E_c)} = \frac{1}{f}. \quad (3)$$

Подставляя (2) в (3) с учетом (1), мы получим

$$E_c = \frac{P_0\Gamma d}{\delta} f \quad (4)$$

— линейную зависимость коэрцитивного поля от частоты, соответствующую эксперименту. С увеличением

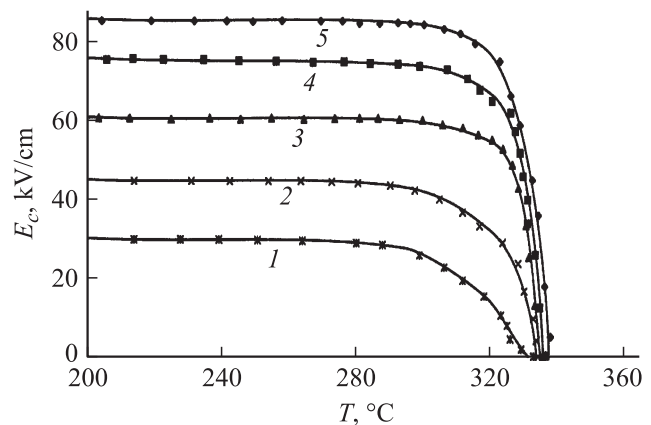


Рис. 3. Температурные зависимости коэрцитивного поля для пленок $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ на поликоровой подложке для различных частот измерительного поля. f, Hz : 1 — 200, 2 — 500, 3 — 700, 4 — 900, 5 — 1100.

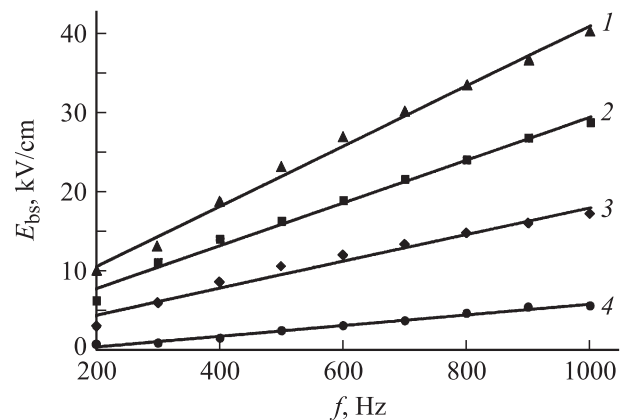


Рис. 4. Частотные зависимости внутреннего поля смещения для пленок $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ на поликоровой подложке при различных температурах. $T, ^\circ\text{C}$: 1 — 270, 2 — 303, 3 — 322, 4 — 329.

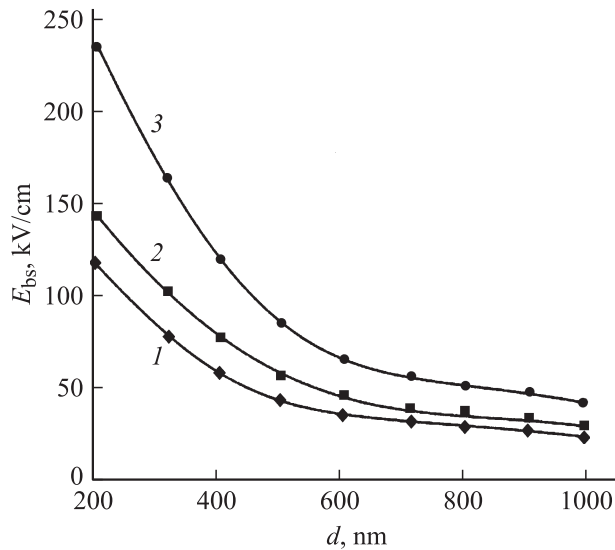


Рис. 5. Зависимость внутреннего поля смещения от толщины для пленок титаната свинца на различных частотах при температуре 460°C . f , Hz: 1 — 200, 2 — 500, 3 — 900.

температуры при приближении к точке Кюри подвижность доменных стенок увеличивается за счет увеличения ширины доменной стенки и уменьшения поляризации. В результате в соответствии с (4) должна уменьшаться скорость роста коэрцитивного поля с частотой, что также соответствует эксперименту.

В соответствии с экспериментом (рис. 4) частотная зависимость внутреннего поля смещения также характеризуется ростом в указанном диапазоне частот. Факторами, ответственными за существование внутреннего поля в исследуемых пленках, можно считать несимметричность системы контактов, возникающей вследствие различных методов нанесения электродов, и несимметричность самой исследуемой структуры диэлектрическая подложка—пленка—электрод, создающей различные возможности переключения пленки в противоположных направлениях в поле данной величины. Описание процессов переключения в этом случае можно проводить с использованием замены величины E в соотношениях (1)–(3) на разность $(E - E_{bs})$.

Наблюдаемое увеличение величины коэрцитивного поля с уменьшением толщины пленок на всех частотах может быть объяснено, например, с помощью модели, предложенной в [9]. Согласно [9], поверхность создает дополнительные центры закрепления доменных стенок, которые складываются с объемными нарушениями структуры. При уменьшении толщины пленки средняя концентрация дефектов возрастает за счет увеличения доли поверхностных дефектов, что и приводит к росту коэрцитивного поля. В рамках этой модели коэрцитивное поле обратно пропорционально толщине пленки, что также согласуется с полученными экспериментальными данными.

4. Заключение

В результате проведенного исследования установлено, что с ростом частоты внешнего переключающего поля в пленках титаната свинца и ЦТС наблюдается рост коэрцитивного поля и внутреннего поля смещения, скорость которого зависит от температуры.

Список литературы

- [1] D. Viehland, Y. Chen. *J. Appl. Phys.* **88**, 6696 (2000).
- [2] А.В. Шильников, Р.А. Лалетин, А.И. Бурханов, А.С. Сигов, К.А. Воротилов. *Материалы Междунар. науч.-техн. конф. „Полимеры-2001“*, МИРЭА, М. (2001). С. 289.
- [3] M.H. Lente, A. Picinin, J.P. Rino, J.A. Eiras. *J. Appl. Phys.* **95**, 2646 (2004).
- [4] А.С. Сидоркин, Л.П. Нестеренко, И.А. Бочарова, Г.Л. Смирнов, С.В. Рябцев. *Изв. РАН. Сер. физ.* **68**, 7, 994 (2004).
- [5] M.D. Glinchuk, A.N. Morozovska. *J. Phys.: Cond. Matter* **16**, 3517 (2004).
- [6] А.С. Сидоркин, Л.П. Нестеренко, Г.Л. Смирнов, А.Л. Смирнов, С.В. Рябцев. *Изв. РАН. Сер. физ.* **71**, 10, 1420 (2007).
- [7] A.S. Sidorkin, L.P. Nesterenko, A.L. Smirnov, G.L. Smirnov, A.A. Sidorkin, S.V. Ryabtsev. *Ferroelectrics* **360**, 25 (2007).
- [8] А.С. Сидоркин. *Доменная структура в сегнетоэлектриках и родственных материалах*. Наука—Физматлит, М. (2000). 240 с.
- [9] А.К. Tagantsev. *Integrated Ferroelectrics* **16**, 237 (1997).