

01;05;08

## Размерный эффект в слоистой сегнетоэлектрической структуре

© С.П. Зубко, Н.Ю. Медведева

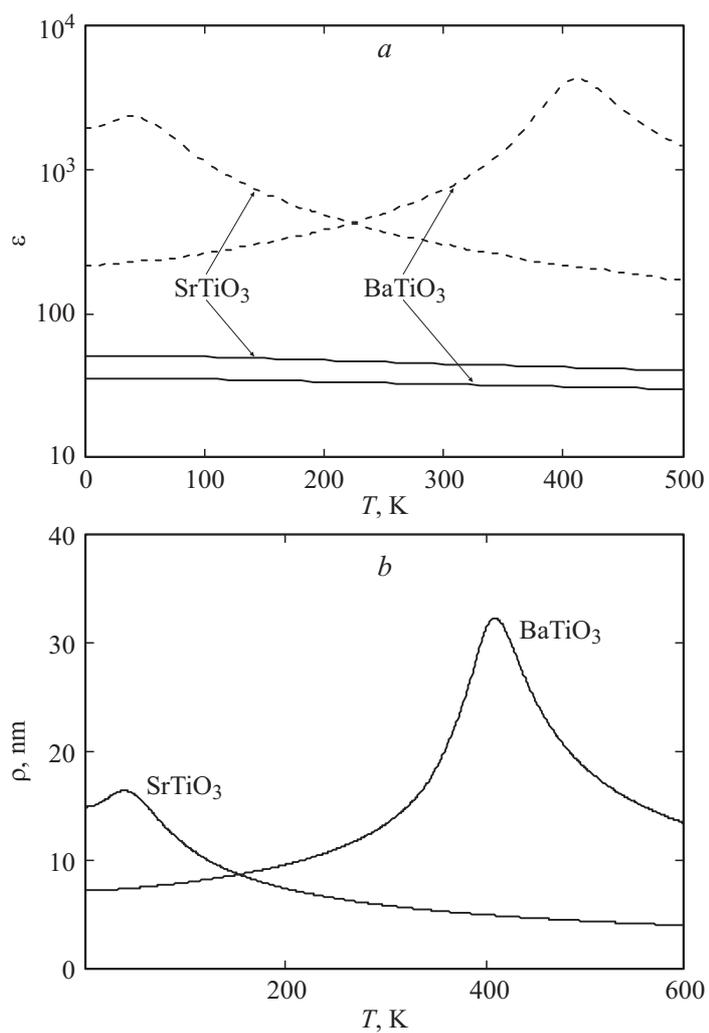
Санкт-Петербургский электротехнический университет  
E-mail: spzubko@gmail.com

Поступило в Редакцию 27 декабря 2013 г.

Теоретически рассчитано и построено пространственное распределение динамической поляризации в конденсаторной структуре, состоящей из тонких слоев  $\text{SrTiO}_3$  и  $\text{BaTiO}_3$ , удовлетворяющее нулевым граничным условиям. Исследовано влияние размерного эффекта на емкость двухслойной сегнетоэлектрической структуры.

Одним из эффективных методов подавления температурной зависимости рабочих параметров электрически управляемых устройств на основе твердого раствора  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  (BSTO) является использование структур, состоящих из нескольких нанослоев BSTO различного компонентного состава [1,2]. Температура, соответствующая максимуму диэлектрической проницаемости слоя BSTO, зависит от его компонентного состава [3,4], поэтому температурная зависимость диэлектрической проницаемости пленки, составленной из нескольких слоев BSTO, оказывается размытой — на ней отсутствует характерный для сегнетоэлектриков максимум. Как правило, толщины отдельных сегнетоэлектрических слоев в составе пленки не превышают нескольких десятков нанометров. В слое такой толщины может возникнуть размерный эффект (зависимость диэлектрических характеристик пленки от ее толщины). Природа размерного эффекта активно обсуждается в современных публикациях, на данный момент единого мнения о ней среди исследователей нет [5–7]. В данной работе рассматривается размерный эффект, обусловленный корреляцией поляризации в сегнетоэлектрике и „блокировкой“ поляризации на границах слоя [8].

Действие размерного эффекта проявляется в уменьшении диэлектрической проницаемости пленки и управляемости, что показано на рис. 1. При построении графиков (рис. 1) использовалась модель



**Рис. 1.** Температурная зависимость: *a* — диэлектрической проницаемости пленок без учета размерного эффекта (пунктирные линии) и с учетом размерного эффекта (сплошные линии) при  $T = 300$  К,  $d = 50$  нм; *b* — радиуса корреляции.

диэлектрической проницаемости сегнетоэлектрика [8]

$$\varepsilon_f = \begin{cases} \varepsilon_{00} \left\{ [(\xi^2 + \eta^3)^{1/2} + \xi]^{2/3} + [(\xi^2 + \eta^3)^{1/2} - \xi]^{2/3} - 2\eta \right\}^{-1}, & T > T_c, \\ \varepsilon_{00} \left\{ 0.25(\xi^2 + \eta^3)\xi^{1/3} + \xi^{1/3} - 2\eta \right\}^{-1}, & T < T_c, \end{cases} \quad (1)$$

$$\eta = \sqrt{\left(\frac{\theta_F}{4T_c}\right)^2 + \left(\frac{T}{T_c}\right)^2} - 1, \quad \xi = \sqrt{\left(\frac{E}{E_N}\right)^2 + \xi_s^2},$$

где использованы следующие модельные параметры:  $\varepsilon_{00}$  — аналог постоянной Кюри–Вейса;  $T_c$  — температура Кюри;  $\theta_F$  — эффективная температура Дебая;  $E_N = 2D_N/\varepsilon_0(3\varepsilon_{00})^{3/2}$ ;  $D_N$  — нормирующая индукция;  $\varepsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость свободного пространства;  $\xi_s$  — параметр кристаллографического качества материала. Все параметры модели являются функциями концентрации бария —  $x$  [3].

Сплошными линиями на рис. 1, *a* показана эффективная диэлектрическая проницаемость с учетом размерного эффекта [8]

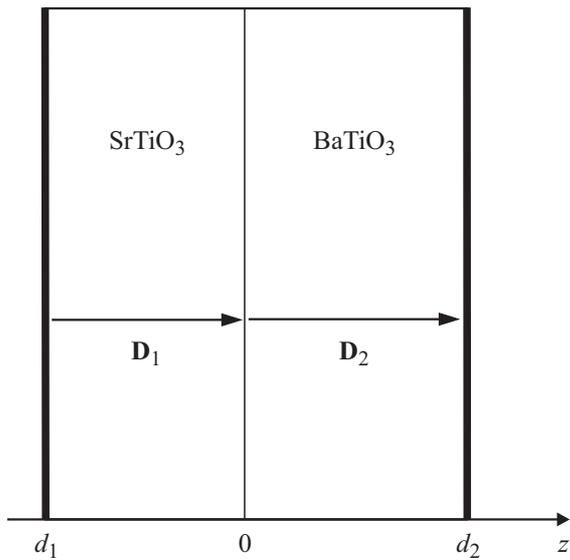
$$\frac{1}{\varepsilon_{eff}} = \frac{1}{\varepsilon_f} + \frac{2\sqrt{2\lambda_1}}{d}, \quad (2)$$

где  $d$  — толщина сегнетоэлектрического слоя. При построении графиков по выражению (2) считалось, что вектор поляризации ориентирован перпендикулярно границам слоя. Параметр корреляции для  $\text{SrTiO}_3$   $\lambda_1 \cong 0.115 \text{ nm}^2$ ; для  $\text{BaTiO}_3$   $\lambda_1 \cong 0.242 \text{ nm}^2$ .

Размерный эффект существенен в пленках, толщины которых меньше критического значения. Для сегнетоэлектрических пленок в качестве критической толщины целесообразно удвоенное значение корреляционного радиуса  $d_{cr} \cong 2\rho = 2\sqrt{\varepsilon_f \lambda_1}$  [5]. Используя кривые на рис. 1, *b*, можно оценить критические толщины пленок, которые при комнатной температуре составляют десятки нанометров.

Данная работа посвящена описанию размерного эффекта в структуре, состоящей из двух сегнетоэлектрических слоев, на основе решения уравнения Гинзбурга–Девоншира для динамической поляризации.

Рассмотрим плоскопараллельную конденсаторную структуру, состоящую из слоя  $\text{SrTiO}_3$  и слоя  $\text{BaTiO}_3$  и электродов из нормального металла, приведенную на рис. 2. Для упрощения анализа будем считать, что в слоях отсутствует объемный заряд ( $\text{div}\mathbf{D} = 0$ ), и к конденсатору приложено только слабое переменное поле, приводящее к возникновению



**Рис. 2.** Конденсаторная структура.

слабой динамической поляризации. Ориентация векторов динамической поляризации и электрической индукции показана на рис. 2.

Корреляционный эффект приводит к изменению свободной энергии структуры:

$$F = \frac{1}{2} aP^2 + \frac{1}{4} bP^4 + \delta |\text{grad } P|^2. \quad (3)$$

В одномерной постановке задачи уравнение (3) может быть преобразовано в уравнение Гинзбурга–Девоншира относительно динамической поляризации  $P_{ac}$  [8]:

$$-2\lambda_1 \frac{d^2 P_{ac}(z)}{dz^2} + \frac{P_{ac}(z)}{\varepsilon_f} + \frac{P_{ac}^3(z)}{D_N^2} = \varepsilon_0 E_{ac}(z). \quad (4)$$

В силу малости поляризации  $P_{ac}$ , обусловленной переменной составляющей заряда, можем линеаризовать уравнение (4):

$$-2\lambda_1 \frac{d^2 P_{ac}(z)}{dz^2} + \frac{P_{ac}(z)}{\varepsilon_f} = \varepsilon_0 E_{ac}(z). \quad (5)$$

Перепишем (5) с учетом  $D(z) = P(z) + \varepsilon_0 E(z)$ :

$$2\lambda_1 \frac{d^2 P_{ac}(z)}{dz^2} - P_{ac}(z) = \frac{\chi_f}{\varepsilon_f} D_{ac}, \quad \chi_f = \varepsilon_f - 1. \quad (6)$$

„Блокировка“ динамической поляризации описывается нулевыми граничными условиями вида  $P_{ac}(z)|_{z=d_1, d_2} = 0$  [8,9]. Для рассматриваемой структуры были сформулированы следующие дополнительные граничные условия:

$$P_1(z)|_{z=d_1} = 0, \quad (7)$$

$$P_2(z)|_{z=d_2} = 0, \quad (8)$$

$$P_1(z)|_{z=0} = P_2(z)|_{z=0}, \quad (9)$$

$$\frac{dP_1(z)}{dz} \Big|_{z=0} = \frac{dP_2(z)}{dz} \Big|_{z=0}. \quad (10)$$

Были найдены решения уравнения (6) для нормальной компоненты поляризации в  $i$ -том слое, удовлетворяющие условиям (7)–(10) и условию непрерывности нормальных компонент электрической индукции на границе раздела сегнетоэлектрических слоев:

$$P_i(z) = A_i \operatorname{ch}(\alpha_i z) + B_i \operatorname{sh}(\alpha_i z) + D_{ac} \frac{\chi_{f,i}}{\varepsilon_{f,i}}, \quad (11)$$

где

$$\alpha_i = \frac{1}{\sqrt{2\lambda_{1,i}}},$$

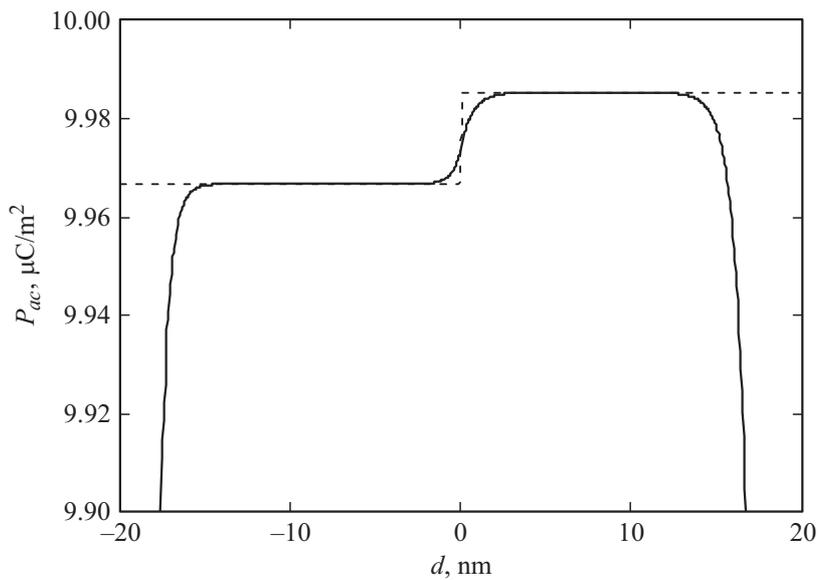
$$A_i = D_{ac} \left[ \frac{\alpha_2 \operatorname{th}(\alpha_1 d_1) G}{\alpha_2 \operatorname{th}(\alpha_1 d_1) - \alpha_1 \operatorname{th}(\alpha_2 d_2)} - \frac{\chi_{f,1}}{\varepsilon_{f,1} \operatorname{ch}(\alpha_1 d_1)} \right],$$

$$B_i = -D_{ac} \frac{\alpha_2 G}{\alpha_2 \operatorname{th}(\alpha_1 d_1) - \alpha_1 \operatorname{th}(\alpha_2 d_2)},$$

$$A_2 = D_{ac} \left[ \frac{\alpha_1 \operatorname{th}(\alpha_2 d_2) G}{\alpha_2 \operatorname{th}(\alpha_1 d_1) - \alpha_1 \operatorname{th}(\alpha_2 d_2)} - \frac{\chi_{f,2}}{\varepsilon_{f,2} \operatorname{ch}(\alpha_2 d_2)} \right],$$

$$B_2 = -D_{ac} \frac{\alpha_1 G}{\alpha_2 \operatorname{th}(\alpha_1 d_1) - \alpha_1 \operatorname{th}(\alpha_2 d_2)},$$

$$G = \frac{\chi_{f,1}}{\varepsilon_{f,1}} \left[ \frac{1}{\operatorname{ch}(\alpha_1 d_1)} - 1 \right] - \frac{\chi_{f,2}}{\varepsilon_{f,2}} \left[ \frac{1}{\operatorname{ch}(\alpha_2 d_2)} - 1 \right].$$



**Рис. 3.** Пространственное распределение нормальной компоненты динамической поляризации в конденсаторной структуре без учета размерного эффекта (пунктирная линия) и с учетом размерного эффекта (сплошная линия) при  $T = 300 \text{ K}$ ,  $D_{ac} = 100 \mu\text{C}/\text{m}^2$ ,  $d_1 = d_2 = 20 \text{ nm}$ ,  $S = 4 \mu\text{m}^2$ .

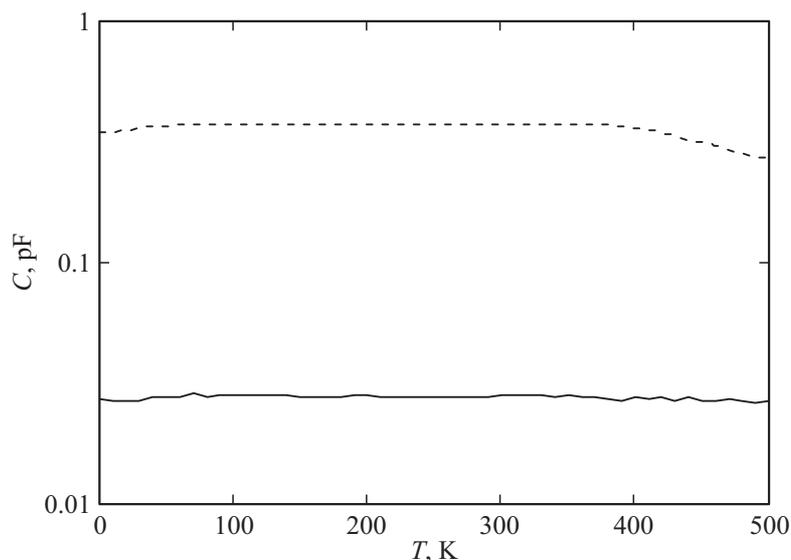
Распределение динамической поляризации в рассматриваемой конденсаторной структуре, рассчитанное по (11), представлено на рис. 3. Пунктирной линией показана поляризация в отсутствие размерного эффекта.

Полученные для поляризации соотношения позволяют рассчитать емкость конденсаторной структуры, изображенной на рис. 4:

$$C = \frac{D_{ac} S \varepsilon_0}{\int_{-d_1}^{d_2} [D_{ac} - P(z)] dz}, \quad (12)$$

где  $S$  — площадь электрода конденсатора.

Как видно из графиков рис. 4, емкость структуры, содержащей два сегнетоэлектрических слоя, можно считать не зависящей от темпе-



**Рис. 4.** Температурная зависимость емкости конденсаторной структуры без учета размерного эффекта (пунктирная линия) и с учетом размерного эффекта (сплошная линия).

ратуры в диапазоне от 110 до 360 К. Также графики рис. 4 наглядно демонстрируют деградацию емкости за счет размерного эффекта (сплошная линия на рис. 4). Учет корреляционного члена ( $\delta|\text{grad}P|^2$ ) в уравнении Гинзбурга–Девоншира приводит к уменьшению расчетной емкости структуры более чем в 10 раз.

Таким образом, показано, что использование в конденсаторе пленки, состоящей из нескольких сегнетоэлектрических слоев, отличающихся компонентным составом, позволяет эффективно подавить температурную зависимость его емкости. Также оценено влияние на емкость слоистого конденсатора размерного эффекта. Показано, что размерный эффект приводит к существенному уменьшению емкости конденсатора, если толщины составляющих пленку сегнетоэлектрических слоев меньше критических.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 13-02-12096 офи\_м.

## Список литературы

- [1] Гольман Е.К., Гольдрин В.И., Логинов В.Е., Прудан А.М., Земцов А.В. // Письма в ЖТФ. 1999. Т. 25. В. 14. С. 1.
- [2] Altynnikov A., Tumarkin A., Gagarin A. et al. // European Microwave Week. Paris, 28–30 September, 2010. P. 898–901.
- [3] Vendik O.G. // Integrated Ferroelectrics. 2002. V. 49. P. 181.
- [4] Vendik O.G., Zubko S.P., Gashinova M.S. // Proc. of Bianisotropics 2004 (10<sup>th</sup> Coonfrence on complex media and metamaterials). September 22–24, 2004, Ghent, Belgium.
- [5] Vendik O.G., Zubko S.P. // Theory and Phenomena of Metamaterials (Handbook of Artificial Materials). V. I / Ed. F. Capolino. Oxford, UK: Taylor and Francis Group, LLC. CRC Press, 2009. ISBN-10: 1–4200–5425–2.
- [6] Давитадзе С.Т., Струков Б.А., Высоцкий Д.В., Леманов В.В., Шульман С.Г., Uesu Y., Asanuma S. // ФТТ. 2008. Т. 50. С. 2206.
- [7] Chang L.W., McMillen M., Morrison F.D. et al. // APL. 2008. V. 93. P. 132904.
- [8] Vendik O.G., Zubko S.P. // JAP. 2000. V. 88. N 9. P. 5343.
- [9] Vendik O.G., Zubko S.P., Medvedeva N.Yu. // JAP. 2009. V. 105. P. 053515.