1988 ФИЗИКА ТВЕРДОГО ТЕЛА Том 30, в. 6
1988 SOLID STATE PHYSICS Vol. 30, № 6

УДК 537.226

ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ НЕЛИНЕЙНОСТЬ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ—ПОЛУПРОВОДНИКОВ

Г. М. Генкин, В. В. Зильберберг, Н. В. Щедрина

Исследована диэлектрическая нелинейность (зависимость диэлектрической проницаемости кристалла от величины приложенного постоянного электрического поля) узкощелевых сегнетоэлектриков-полупроводников. Рассмотренная нелинейность обусловлена нелинейностью носителей в сегнетополупроводниках, которая приводит к изменению частоты мягкой моды в поле из-за межзонного электрон-фононного взаимодействия, а в следствие этого и изменению диэлектрической проницаемости. Показано, что такая нелинейность существенно больше (по оценкам для кристалла $Pb_{1-x}Ge_xTe$ примерно на 2 порядка) диэлектрической нелинейности в сегнетодиэлектриках. Рассмотрен конденсатор с электрически управляемой емкостью на основе узкощелевых сегнетополупроводников; показано, что в них характерное управляющее нелинейным конденсатором напряжение существенно меньше, чем в сегнетодиэлектриках.

Нелинейные свойства сегнетоэлектриков представляют значительный интерес. Диэлектрическая нелинейность (зависимость диэлектрической проницаемости ε от величины приложенного электрического поля) сегнетоэлектриков широко используется [1] в технике СВЧ (конденсаторы с электрически управляемой емкостью (нелинейный конденсатор, электрически перестраиваемые фильтры и т. д.). При этом характерные поля E_x, при которых нелинейность существенна, в широко используемых перовскитоподобных сегнетоэлектриках порядка десятков кВ/см.

В настоящей работе исследуется диэлектрическая нелинейность сегнетоэлектриков—полупроводников с узкой запрещенной зоной ($\varepsilon_g \lesssim$ $\lesssim (0.2 \div 0.3$ эВ)) типа A_4B_6 и соединений на их основе: SnTe, $Pb_{1-x}Sn_xTe$, $Pb_{1-x}Ge_xTe$; при этом, как будет показано ниже, в этом случае E_x существенно меньше. В рассматриваемых сегнетополупроводниках вблизи температуры T_c фазового перехода существенную роль играет межзонное[1] электрон-фононное взаимодействие [2-4]. Соответствующий вклад в частоту мягкой моды ω_c определяется соотношением

$$\Delta(\omega_c^2) = \omega_0^2 \Pi, \tag{1}$$

где ω_0 — затравочная частота данного колебания; Π — поляризационный оператор, который во втором порядке по константе электрон-фононного взаимодействия Λ равен

$$\Pi = -2 \int \frac{d^3p}{(2\pi)^3} \Lambda^2 \frac{f(\varepsilon_2) - f(\varepsilon_1)}{\varepsilon_1(p) - \varepsilon_2(p)}. \tag{2}$$

В [5] найдена частота мягкой моды, при этом Π вычислен в приближении $T=0$, поскольку температурная зависимость мягкой моды обусловлена в основном ангармонизмами [5]. Однако при рассмотрении воздействия электрического поля на сегнетополупроводники необходим учет зависимости поляризационного оператора Π от температуры электронной подсистемы. Это обусловлено тем, что частота мягкой моды зависит от элек-

[1] Внутризонное электрон-фононное взаимодействие, как показывают оценки, вносит существенно меньший вклад.

тронной функции распределения $f(\varepsilon)$, параметры которой (электронная температура) изменяются под действием электрического поля (разогрев носителей полем особенно велик в узкощелевых полупроводниках, где подвижность носителей велика).

Рассмотрим примесный узкощелевой полупроводник типа $Pb_{1-x}Ge_xTe$, $Pb_{1-x}Sn_xTe$, в котором обычно носители вырождены [6]. Будем полагать, что энергетический спектр носителей является одномерным [2] и имеет следующий вид

$$\varepsilon_{1,2}(p_x) = \pm \sqrt{\Delta^2 \sin^2 \frac{p_x a}{2} + \frac{\varepsilon_g^2}{4}}, \tag{3}$$

где a — постоянная решетки, Δ и ε_g — ширина разрешенной и запрещенной зон соответственно.

Вычисляя (2) при $\varepsilon_g \gg \mu > \Theta$ и учитывая зависимость химического потенциала μ от электронной температуры Θ, найдем добавку к частоте мягкой моды $\Delta\omega_c(\Theta)$ в параэлектрической фазе, обусловленную ненулевой электронной температурой

$$\Delta\omega_c(\Theta) = -\frac{3}{2} \frac{\omega_0^2}{\omega_c(0)} \tau \Theta^2 \mu_0^{-1/2} \varepsilon_g^{-3/2}, \tag{4}$$

где μ_0 — энергия Ферми, $\tau \gg 1$ — параметр образования мягкой моды (для одномерного электронного спектра $\tau = \Lambda^2/4\pi a^2 \Delta$). При этом формула (4) имеет место для $\Delta\omega_c(\Theta) \ll \omega_c(0)$, когда

$$\Delta(\omega_c^2(\Theta)) \simeq 2\omega_c(0)\, \Delta\omega_c(\Theta).$$

Как следует из выражения (4), электрическое поле может изменить $\Delta\omega_c(\Theta)$, меняя величину запрещенной зоны ε_g и электронную температуру Θ. Можно показать, что вклад благодаря эффекту увеличения в поле ε_g (эффект Керна—Харбеке) в полях $E \leqslant 100$ В/см пренебрежимо мал по сравнению с вкладом, обусловленным разогревом носителей в поле. Функция $\Theta(E)$ есть

$$\Theta = \frac{T}{2}\left(1 + \sqrt{1 + \gamma E^2}\right), \tag{5}$$

где T — температура решетки, и можно показать, что при рассеянии на акустических [3] фононах для вырожденных электронов

$$\gamma \approx \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left(\frac{\varphi_0}{u_l}\right)^2 \frac{T}{\mu_0}, \tag{6}$$

где φ_0 — подвижность электронов в слабом поле, u_l — скорость продольной акустической волны. Из (4)—(6) для относительного изменения частоты мягкой моды в поле E, обусловленного разогревом носителей, получаем

$$\frac{\Delta\omega_c^p(E)}{\omega_c} = -A \left(\frac{\omega_0}{\omega_c}\right)^2 \tau T^2 \mu_0^{-1/2} \varepsilon_g^{-3/2} \gamma E^2, \tag{7}$$

где для теплых носителей ($\gamma E^2 < 1$) коэффициент $A = 0.8$, а для горячих ($\gamma E^2 > 1$) $A = 0.4$. Заметим, что так как частота мягкой моды ω_c при $T \to T_c$ убывает, то относительное изменение $(\Delta\omega_c^p(E)/\omega_c) \sim (\omega_0/\omega_c)^2$ в критической области температур растет; для кристаллов с меньшей ε_g оно также больше.

Отметим, что зависимость ω_c от величины электрического поля может быть обусловлена изменением электронного спектра $\varepsilon_i(p)$ (в выражении (2)) за счет непосредственного взаимодействия носителей с полем, приводя-

[2] Проведены расчеты также и для трехмерного спектра; качественно результаты не меняются и ниже не приводятся для краткости изложения. Заметим, что существование одномерного спектра в рассматриваемых кристаллах обсуждается в литературе [7, 8].

[3] Так как $T_c \ll \Theta_D$, где Θ_D — температура Дебая, рассеянием на оптических фононах можно пренебречь.

щего, в частности, к нелинейности электронной подсистемы. При малых полях этот дополнительный вклад, пропорциональный E^2, дает аддитивную добавку к выражению (7), которая для одномерного спектра вида (3) пропорциональна максимуму из параметров $(\mu_0/\varepsilon_g) < 1$ и $p_F a < 1$, где p_F — импульс Ферми и ее относительная к (7) величина порядка $10^{-1} \div 10^{-2}$.

Имеется также прямое взаимодействие постоянного электрического поля с поляризацией, обусловленной мягкой фононной модой, которое приводит к «размытию» перехода в поле, а также к изменению частоты. Это изменение определяется фононным ангармонизмом, и соответствующий относительный вклад в частоту мягкой моды

$$\frac{\Delta\omega_c^\Phi(E)}{\omega_c} = \frac{\varepsilon_0^\Phi E^2}{4\omega_c^4}, \tag{8}$$

где ε_0 — статическая диэлектрическая проницаемость, Φ — константа фононного ангармонизма четвертого порядка, нормированная на число ячеек в единице объема N. Заметим, что именно эта нелинейность (фононная) определяет диэлектрическую нелинейность сегнетодиэлектриков.

Кроме того, в сегнетополупроводниках необходимо учитывать изменение частоты мягкой моды, обусловленное омическим нагревом решетки кристалла на ΔT. Этот вклад зависит от условий эксперимента и будет оценен ниже; очевидно, что

$$\frac{\Delta\omega_c^T(E)}{\omega_c} = \frac{1}{\omega_c^2}\Delta T\frac{\partial\omega_c^2}{\partial T}. \tag{9}$$

Фононная часть диэлектрической проницаемости среды $\varepsilon(\omega)$ определяется частотой мягкой моды, и изменение ее под действием электрического поля приводит к диэлектрической нелинейности. Далее рассмотрим диэлектрическую нелинейность сегнетополупроводников на примере нелинейного конденсатора, в котором емкость на частоте ω изменяется под действием приложенного управляющего постоянного поля E_0; при этом на частотах $\omega < \omega_c$ относительное изменение емкости $\Delta c_\omega(E_0)/c_\omega(0)$ пропорционально относительному изменению частоты мягкой моды $\Delta\omega_c(E_0)/\omega_c$, а при $\omega > \omega_c$ оно пропорционально также еще и малому параметру $(\omega_c/\omega)^2$.

Пользуясь формулами (7)—(9), находим относительное изменение емкости на частоте переменного поля $\omega < \omega_c$

$$\frac{\Delta c_\omega(E_0)}{c_\omega(0)} = \frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_0+\varepsilon_\infty}\left\{A\left(\frac{\omega_0}{\omega_c}\right)^2\tau\frac{T^2}{\varepsilon_g^{3/2}\mu_0^{1/2}}\gamma E_0^2 - \frac{3\Phi\varepsilon_0}{4\omega_c^4}E_0^2 - \frac{1}{\omega_c^2}\frac{\partial\omega_c^2}{\partial T}\Delta T\right\}. \tag{10}$$

Рассмотрим относительные потери нелинейного конденсатора. Для проводящей среды потери на частоте ω определяются фактором $4\pi\sigma(\omega)/\varepsilon_0\omega$, где $\sigma(\omega) = \sigma(0)(\nu/\omega)^2$ при $\omega \gg \nu$ и $\nu^{-1} \equiv \tau_m$ — среднее время релаксации импульса носителей. Поэтому для их уменьшения желательно иметь $\omega \gg \nu$, тем самым наилучшим является следующий частотный интервал нелинейного конденсатора $\nu \ll \omega < \omega_c$. В сегнетополупроводниках имеется также фононное затухание. При $\omega < \omega_c$ в слабодемпфированных кристаллах $\operatorname{tg}\delta = \Gamma\omega/\omega_c^2$, где Γ — константа затухания мягкой моды, при этом, согласно [9], в рассматриваемых кристаллах мягкая мода является недодемпфированной $\Gamma/\omega_c \ll 1$. Таким образом, в кристаллах с большими ω_c относительные потери меньше; заметим также, что в зависимости от частоты внешнего поля ω полные относительные потери (электронные и фононные) минимальны в области некоторого частотного оптимума. Проведем все оценки для кристалла $Pb_{1-x}Ge_xTe$. Для этого кристалла оптимум по потерям находится в миллиметровом диапазоне длин волн в области $\lambda \sim 1$ мм, где по оценкам при [6, 9, 10] $\Gamma \sim 1$ см$^{-1}$, $\omega_c \sim 15$ см$^{-1}$, $\sigma(0) \sim 5\cdot10^3$ Ом$^{-1}\cdot$см$^{-1}$, $\varepsilon_0 \sim 10^4$, $\nu \sim 1.5\cdot10^{11}$ с$^{-1}$ электронные потери — $\operatorname{tg}\delta^{\text{эл}}$ 0.03, фононные — $\operatorname{tg}\delta^{\text{фон}} \sim 0.04$.

Оценки для относительного изменения емкости таковы (по [6] при $x \sim 0.02$, $\varepsilon_g \sim 0.2$ эВ; $\varphi_0 \sim 2 \cdot 10^4$ см$^2 \cdot$В$^{-1} \cdot$с$^{-1}$ и для концентрации носителей $n \sim 10^{18}$ см$^{-3}$ $\mu_0 \sim 10^{-2}$ эВ): в полях $E_0 \sim 30$ В/см в окрестности температур T, где имеется смягчение критической моды $(\omega_c/\omega_0) \sim 0.3$, имеем $(\Delta c_\omega^v (E_0)/c_\omega (0)) \sim 0.3$; в области температур T, когда смягчение несущественно, такое относительное изменение емкости порядка 0.3 достигается в полях $E_0 \sim 100$ В/см; фононная нелинейность при таких полях (пользуясь [8], $\Phi \approx 3 \cdot 10^{64}$ г$^{-1} \cdot$см$^{-2} \cdot$с$^{-2} \cdot N^{-1}$, $N \sim 0.2 \cdot 10^{22}$ см$^{-3}$) дает $(\Delta C_\omega^\Phi (E_0)/C_\omega (0)) \sim 10^{-4}$. Следует заметить, что именно фононная нелинейность, обусловленная ангармонизмом решетки, приводит к характерному полю нелинейности порядка 10^4 В/см, которая и имеет место в сегнетодиэлектриках; тогда как нелинейность, обусловленная неомичностью электронов в полупроводниках, определяется существенно меньшим характерным полем. Конструктивно [1] нелинейные конденсаторы выполняются в виде тонких пленок сегнетоэлектрика на хорошо теплопроводящих диэлектрических подложках для обеспечения наилучших условий теплоотвода; в этом случае нагрев легко оценить, пользуясь расчетом из [1]

$$\Delta T = \frac{Ph^2}{2\lambda T_2} \left(\frac{2}{\pi} \ln \frac{H}{h} + \frac{\lambda_{T_2}}{\lambda_{T_1}} \right), \tag{11}$$

где h и H — толщины пленки и подложки соответственно; λ_{T_1} и λ_{T_2} — коэффициенты теплопроводности пленки и подложки; $P = \sigma E_0^2$ — плотность выделяемой мощности. Пользуясь данными из [9] и [6]: $(d\omega_c^2/dT) \sim$ ~ 1.2 см^2 К$^{-1}$, $T_c \approx 76$ К для $x \approx 0.02$ $\sigma \sim 5 \cdot 10^3$ Ом$^{-1} \cdot$см$^{-1}$ и типичными [1] размерами $h \sim 10^{-4}$ см, $H \sim 10^{-1}$ см и в качестве теплопроводящей подложки сапфиром, у которого [1] при $T \approx 78$ К $\lambda_{T_2} \sim 9$ Вт$\cdot$см$^{-1} \cdot$К$^{-1}$, получаем, что $(\Delta C_\omega^T (E_0)/C_\omega (0)) \sim 5 \cdot 10^{-3}$ при $E_0 \sim 30$ В/см.

В заключение отметим, что самым серьезным «конкурентом» рассмотренного эффекта является изменение емкости, обусловленное нагревом решетки кристалла, которое существенно зависит от условий теплоотвода и, в частности, при увеличении толщины пленки h растет как h^2; тогда как фононная нелинейность в узкощелевых сегнетополупроводниках всегда меньше нелинейности, обусловленной нелинейностью электронного газа. Тем самым и характерное поле нелинейности (и управляющее нелинейным конденсатором напряжение) в узкощелевых сегнетополупроводниках примерно на 2 порядка меньше, чем в перовскитоподобных сегнетодиэлектриках.

В заключение авторы выражают благодарность О. Г. Вендику за полезные обсуждения.

Литература

[1] Сегнетоэлектрики в технике СВЧ / Под ред. О. Г. Вендика. М., 1979. 272 с.

[2] *Консин П. И.*, *Кристофель Н. Н.* Вибронная теория сегнетоэлектричества. УФН, 1976, т. 120, № 3, с. 507—509.

[3] *Берсунер И. Б.*, *Вехтер Б. Г.*, *Огурцов И. Я.* Туннельные эффекты в многоатомных системах. УФН, 1975, т. 116, № 4, с. 605—641.

[4] *Гиршберг Я. Г.*, *Тамарченко В. И.* ФТТ, 1976, т. 18, № 4, с. 1066—1072.

[5] *Литвинов В. И.*, *Волков В. Л.*, *Дугаев В. К.* ФТТ, 1980, т. 22, № 1, с. 57—62.

[6] *Takaoka S.*, *Myrase K.* Phys. Rev., 1979, vol. B20, N 7, p. 2823—2833.

[7] *Дугаев В. К.*, *Литвинов В. И.* ФТТ, 1983, т. 25, № 1, с. 136—143.

[8] *Литвинов В. И.*, *Волков В. Л.* ФТТ, 1980, т. 22, № 2, с. 617—619.

[9] Dynamical Properties of IV—VI Compounds, Springer Tracts in Modern Physics, Springer-Verlag — Berlin, 1983, vol. 99, p. 101.

[10] *Jchiguchi F.*, *Nishikawa S.*, *Murase S.* Sol. St. Commun., 1980, vol. 34, p. 309.

Горьковский политехнический
институт им. А. А. Жданова
Горький

Поступило в Редакцию
1 апреля 1987 г.
В окончательной редакции
8 октября 1987 г.