

## Феноменологическое описание зависимости диэлектрической проницаемости титаната стронция от приложенного электрического поля и температуры

© О.Г. Вендик, С.П. Зубко

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет, 197376 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 31 июля 1995 г. В окончательной редакции 21 октября 1996 г.)

Проверена применимость феноменологического описания зависимости диэлектрической проницаемости от приложенного электрического поля и температуры реальных монокристаллических образцов титаната стронция. Показано, что данная модель является достаточно надежным средством количественного описания зависимости  $\varepsilon(E, T)$  как в случае изотропного, так и в случае анизотропного кристалла. Модель хорошо работает и в случае дефектных пленок SrTiO<sub>3</sub>.

### Введение

Сегнетоэлектрические материалы представляют интерес для техники СВЧ, потому что их основным свойством является существенная зависимость величины диэлектрической проницаемости от приложенного электрического поля и температуры, т.е. диэлектрическая нелинейность. Эта особенность материала позволяет создавать устройства с электрически управляемыми характеристиками. Но до недавнего времени сегнетоэлектрики не находили широкого практического применения в СВЧ устройствах, причиной чего является высокий уровень диэлектрических потерь при температурах, близких к комнатной. Титанат стронция является виртуальным сегнетоэлектриком. Зависимость  $\text{tg } \delta$  титаната стронция от температуры на СВЧ имеет минимум при  $T = 70 - 80$  К, величина потерь при этих температурах на порядок ниже, чем при комнатной.

Открытие в 1987 г. высокотемпературных сверхпроводников вызвало интерес к разработке устройств, функционирующих при температурах, близких к температуре жидкого азота [1]. В результате появился интерес к разработке устройств на основе сегнетоэлектрических материалов, в частности титаната стронция, работающих при  $T = 70 - 80$  К [2], что потребовало надежного феноменологического описания поведения основной характеристики сегнетоэлектрика — диэлектрической проницаемости для разработки систем автоматизированного проектирования СВЧ приборов на основе сегнетоэлектриков.

### Феноменологическая модель

В работах [3–5] была предложена феноменологическая модель зависимости  $\varepsilon(E, T)$ , хорошо согласующаяся с экспериментом [3,5–7],

$$\varepsilon E, T = \varepsilon_{\infty} \Phi(\xi, \eta)^{-1}, \quad (1)$$

$$\Phi(\xi, \eta) = \left[ (\xi^2 + \eta^3)^{1/2} + \xi \right]^{2/3} + \left[ (\xi^2 + \eta^3)^{1/2} - \xi \right]^{2/3} - \eta, \\ \xi = \left[ (E/E_N)^2 + \xi_{st}^2 \right]^{1/2}, \quad (2)$$

$$\eta = (\theta_F/T_c) \left[ 1/4 + z^2 \int_0^{1/z} (\exp(x) - 1)^{-1} x dx \right] - 1, \\ z = T/\theta_F. \quad (3)$$

Обозначим

$$f(z) = 1/4 + z^2 \int_0^{1/z} (\exp(x) - 1)^{-1} x dx. \quad (4)$$

Функцию  $f(z)$  можно представить в виде полинома

$$g(z) = \left[ 1/16 - zA + z^2 \right]^{1/2}. \quad (5)$$

При  $A = 0.01$  в диапазоне  $0 \leq z \leq 2$  погрешность аппроксимации функции  $f(z)$  полиномом  $g(z)$  не превышает 0.1%.

Перепишем выражение (3) с учетом (4), (5) в следующем виде:

$$\eta = (\theta_F/T_c) \left[ 1/16 - 0.01(T/\theta_F) + (T/\theta_F)^2 \right]^{1/2} - 1, \quad (6)$$

где  $T_c, \varepsilon_{00}, E_N, \theta_F, \varepsilon_{st}$  — параметры модели;  $T_c$  — эффективная температура фазового перехода, которая традиционно определяется как точка пересечения касательной к кривой  $\varepsilon^{-1}(T)$  с осью абсцисс;  $\varepsilon_{00} = C/T_c$ , где  $C$  — постоянная Кюри-Вейса, традиционно определяемая через наклон касательной к кривой  $\varepsilon^{-1}(T)$  по отношению к оси абсцисс, в этом смысле  $T_c$  и  $\varepsilon_{00}$  являются фундаментальными характеристиками материала;  $E_N$  — нормирующее поле;  $\theta_F$  — температура Дебая, определяющая вклад нулевых колебаний в амплитуду колебаний подрешеток кристалла при  $T < \theta_F$ ,  $\theta_F$  является характеристикой виртуального сегнетоэлектрика.

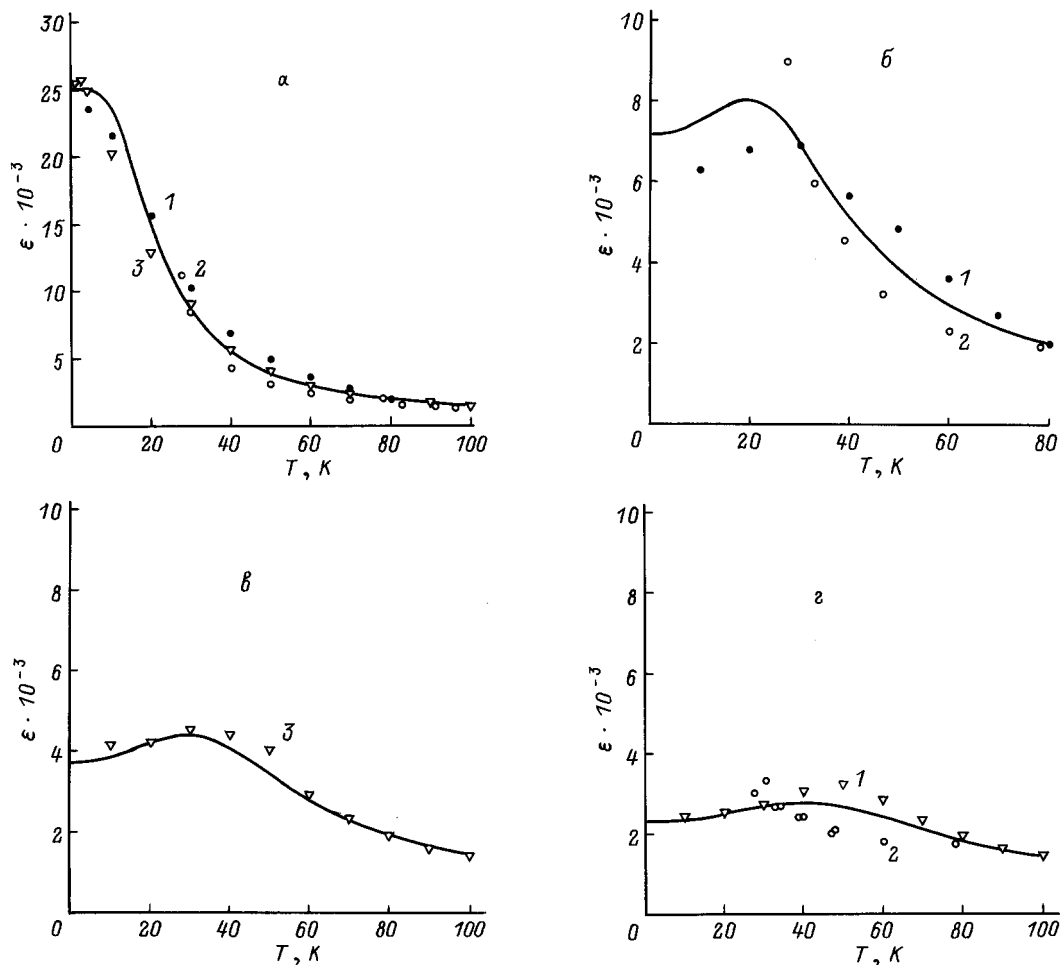


Рис. 1. Расчет зависимости  $\varepsilon(E, T)$  и экспериментальные точки. 1 — [6], 2 — [12], 3 — [11];  $E$ , кВ/см: а — 0, б — 2, в — 5, г — 10.

Такая характеристика была введена Дж. Барреттом [8]. В модельном описании, представленном формулой (1),  $\theta_F$  количественно отличается от эффективной температуры, введенной в [8];  $\varepsilon_{st}$  — характеристика внутреннего напряжения в кристалле, введенная в [3]. Эта характеристика носит чисто феноменологический характер.

Вблизи 110 К  $\text{SrTiO}_3$  претерпевает структурный фазовый переход в тетрагональную фазу, существующую при  $T < 110$  К, и его структуру можно рассматривать как доменную. Известно, что одноосное сжатие монокристалла приводит к его монодоменизации. При этом диэлектрические свойства  $\text{SrTiO}_3$  становятся анизотропными [9]. Следовательно, параметры модели должны иметь различные значения для диэлектрической проницаемости кристалла, измеренной вдоль разных кристаллографических осей. В связи с этим будет рассмотрено поведение зависимости диэлектрической проницаемости от поля и температуры в случае изотропного и анизотропного кристалла  $\text{SrTiO}_3$ .

В работах [3,5] приводятся методики определения величин параметров модели на основе использования данных по зависимости  $\varepsilon(E, T)$ , полученных экспериментальным путем. В данных методиках используются графические построения или метод наименьших квадратов. Количественные результаты в отношении параметров модели, полученные в [3,5], не вполне надежны вследствие того, что они не были проверены на достаточном количестве экспериментального материала. Кроме того, при выполнении расчетов [3] авторы не располагали необходимым компьютерным обеспечением. Теперь соответствующие расчеты могут быть сделаны значительно надежнее.

### Изотропный монокристалл $\text{SrTiO}_3$

На рис. 1–3 приведены экспериментальные [6,10–13] и теоретические зависимости  $\varepsilon(E, T)$ . Хорошее соответствие экспериментальных кривых и кривых, рассчитанных по формулам (1), (2), (6), обеспечивает набор параметров, представленный в табл. 1.

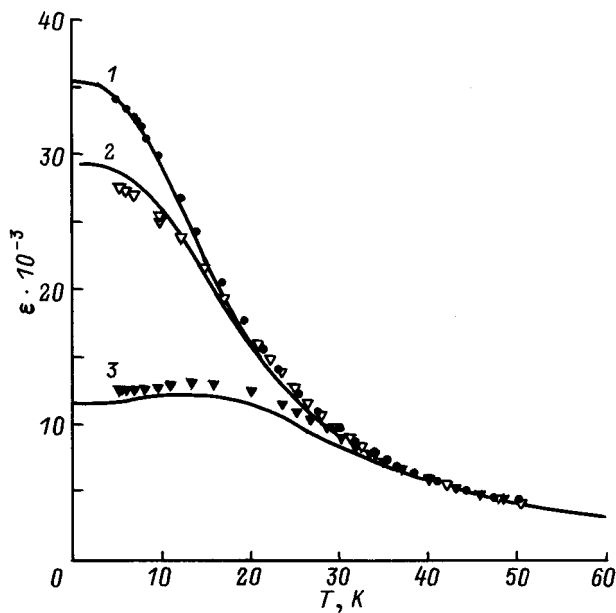


Рис. 2. Расчет зависимости  $\epsilon(E, T)$  и экспериментальные точки [13] для монокристалла  $\text{SrTiO}_3$  малой дефектности.  $E$ , кВ/см: 1 — 0, 2 — 0.206, 3 — 1.03.

Авторы работ [6,11] не рассматривали зависимость  $\epsilon$  от приложенного электрического поля при температурах выше 60 К. Данные, приведенные в работах [12,10], демонстрируют ощутимую зависимость  $\epsilon$  от напряженности приложенного электрического поля в диапазоне температур 60–100 К.

Из табл. 1 видно, что значения параметров  $T_c$ ,  $\epsilon_{00}$ ,  $E_N$  лежат в границах диапазона, характерного для многократно повторенных экспериментов с высококачественными монокристаллами титаната стронция. Существенное различие имеет только параметр  $\epsilon_{st}$ . Следовательно, можно сделать вывод о качестве кристаллов, использованных в этих работах. В работе [10] исследовались кристаллы  $\text{SrTiO}_3$  более низкого качества. Действительно, по сообщениям авторов работ [6,11,12] для измерений использовались монокристаллы  $\text{SrTiO}_3$  высокого качества. Таким образом, по величине  $\epsilon_{st}$  можно судить о степени дефектности кристалла.

**Феноменологическое описание дефектного титаната стронция**

На рис. 4 показана зависимость  $\epsilon$  от  $T$  при  $E = 0$ , но при разных значениях параметра  $\epsilon_{st}$ . С увеличением  $\epsilon_{st}$  величина диэлектрической проницаемости уменьшается, максимум смещается в сторону больших температур. Так, в пионерской работе Г.А. Смоленского [14] положение максимума зависимости  $\epsilon(T)$  соответствует температуре  $T = 50$  К, что говорит о большом значении параметра  $\xi_{st}$ , а следовательно,

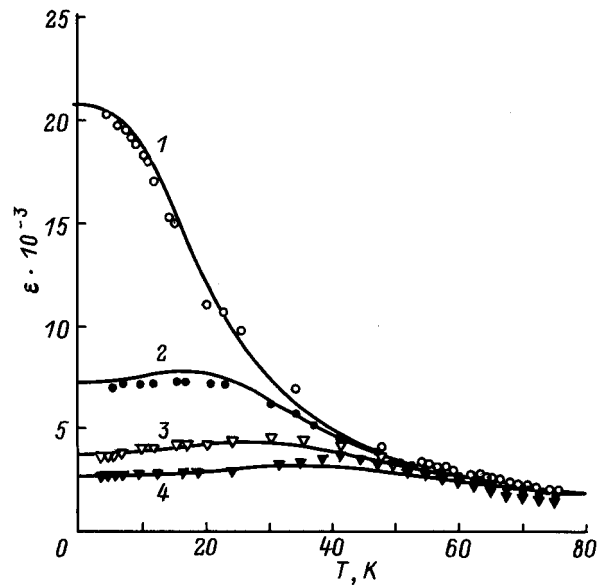


Рис. 3. Расчет зависимости  $\epsilon(E, T)$  и экспериментальные точки [10]. Измерения подтверждают зависимость  $\epsilon$  от  $E$  при  $T > 60$  К;  $E$ , кВ/см: 1 — 0, 2 — 2, 3 — 5, 4 — 8.

о большой дефектности материала. Действительно, в [14] исследовались керамические образцы  $\text{SrTiO}_3$  при невысоком качестве их получения.

На рис. 4 показан максимум на кривой зависимости  $\epsilon(T)$  при  $\xi_{st} = 0$  в точке  $T \cong 0.8$  К (см. вставку). Наличие этого максимума является следствием аппроксимации (формулы (3)–(6)). Таким образом, модель при температуре ниже 1 К не является достоверной.

Модель позволяет найти положение максимума (при разных значениях  $\xi_{st}$ )  $T_{max}$  и величину проницаемости в этой точке  $\epsilon_{max}$ . Зависимость  $\epsilon_{max}$  от  $T_{max}$  представлена на рис. 5. В табл. 2 приведены величины  $T_{max}$  и  $\epsilon_{max}$ , взятые из ряда экспериментальных работ.

Таблица 1.

Эксперимент	$T_c$ , К	$\epsilon_{00}$	$E_N$ , кВ/см	$\theta_F$ , К	$\epsilon_{st}$
[6,11,12]	36	2842	13.7	152	0.027
[10]	35	2750	13.7	152	0.033
[13]	37	3050	12.0	158	0.015

Таблица 2.

Эксперимент	$T_{max}$	$\epsilon_{max}$ (эксперимент)	$\epsilon_{max}$ (модель)
[14]	50	1800–2000	1980
[15]	40–42	1500–3000	2600
[16]	51–52	1800–2500	1900

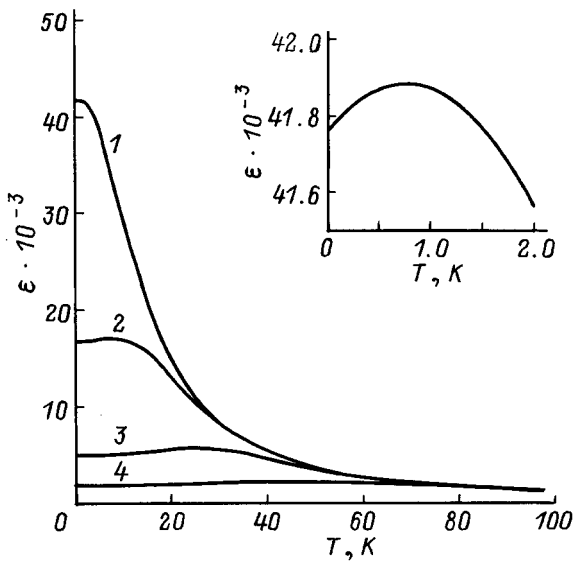


Рис. 4. График зависимости  $\varepsilon(T)$  при различных значениях  $\xi_{st}$ , рассчитанной по формулам (1), (2), (6).  $\xi_{st}$ : 1 — 0, 2 — 0.05, 3 — 0.25, 4 — 1; на вставке приведена зависимость  $\varepsilon(T)$  при  $T < 2$  К,  $\xi_{st} = 0$ .

Большой разброс в значениях  $\varepsilon_{\max}$  объясняется неточностью оценки толщины пленок и их пористости, а также недостоверностью расчетной модели планарного конденсатора. Различие положений максимума говорит о разной степени дефектности материалов. С учетом разброса экспериментальные точки ложатся на расчетную кривую (рис. 5).

На основании приведенных данных можно высказать гипотезу о том, что введенный в [3] параметр  $\xi_{st}$  позволяет описывать диэлектрические свойства титаната стронция с ненарушенной стехиометрией, но высоким уровнем внутренних напряжений. Эта гипотеза должна быть в дальнейшем проверена путем установления корреляции между найденным параметром  $\xi_{st}$  и данными рентгенодифракционного анализа материала.

### Анизотропный монокристалл SrTiO<sub>3</sub>

Как упоминалось выше, монокристалл SrTiO<sub>3</sub> является анизотропным при низких температурах. Как видно из рис. 6, феноменологическая модель, представленная формулой (1), хорошо описывает и этот случай.

Таблица 3.

Эксперимент	$T_c$ , К	$\varepsilon_{00}$	$E_N$ , кВ/см	$\theta_F$ , К	$\varepsilon_{st}$
$\varepsilon_a$	36	2550	13.7	151	0.022
$\varepsilon_c$	36	2550	13.7	175	0.022

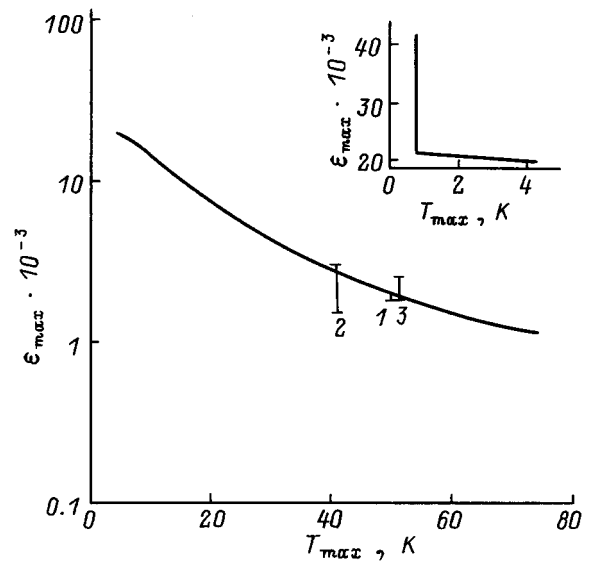


Рис. 5. Расчет зависимости  $\varepsilon_{\max}(T_{\max})$  и экспериментальные точки. 1 — [14], 2 — [15], 3 — [16] для образцов разной степени дефектности; на вставке приведена зависимость  $\varepsilon_{\max}(T_{\max})$  при  $T < 5$  К.

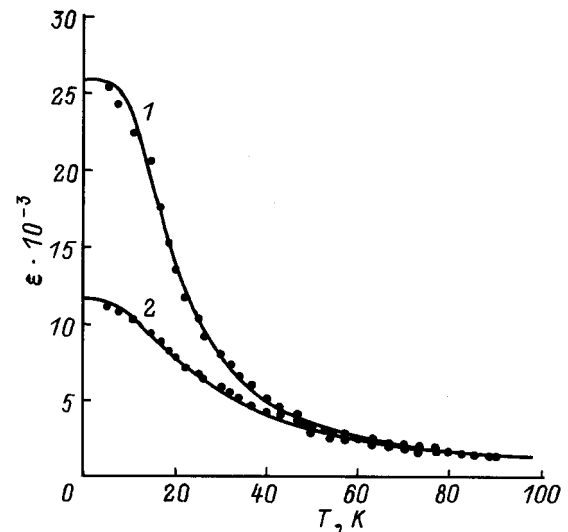


Рис. 6. Расчет зависимости  $\varepsilon(T)$  и экспериментальные точки [9] для монокристаллизованного анизотропного кристалла SrTiO<sub>3</sub>.  $E = 0$ ; 1 —  $\varepsilon_a(T)$ , 2 —  $\varepsilon_c(T)$ .

Как видно из табл. 3, анизотропным является только параметр  $\theta_F$ . Это, по-видимому, объясняется различием амплитуд нулевых колебаний кристаллической решетки вдоль различных осей монокристаллизованного кристалла.

### Заключение

Из анализа экспериментальных данных видно, что рассмотренная феноменологическая модель является достаточно надежным средством количественного

описания зависимости диэлектрической проницаемости титаната стронция от напряженности приложенного поля и температуры как в случае изотропного, так и в случае анизотропного монокристалла. К сожалению, авторы экспериментальных работ не приводят оценку погрешности измерений, которая может являться причиной некоторого расхождения экспериментальных и расчетных кривых. Как показал анализ, в случае анизотропии анизотропной является только эффективная температура Дебая  $\theta_F$ .

Параметр модели  $\xi_{st}$  несет информацию о дефектности монокристалла. Чем ниже качество кристалла, тем больше величина данного параметра. Модель хорошо описывает зависимость  $\varepsilon(E, T)$  дефектных пленок SrTiO<sub>3</sub>.

Авторы благодарны С.С. Геворкяну и А.И. Дедык за предоставленные в виде таблиц данные измерений зависимости диэлектрической проницаемости титаната стронция от приложенного поля и температуры, А.Б. Козыреву и Л.Т. Тер-Мартirosяну за обсуждение материалов и полезные замечания по тексту.

## Список литературы

- [1] *Zhi-Huan Shen.* // High-temperature Superconductor Microwave Circuits. Artech Home, 1994.
- [2] *Vendik O.G., Ter-Martirosyan L.T., Dedyk A.I.* et al. // Ferroelectrics. 1993. Vol. 144. N 1–4. P. 33–43.
- [3] *Вендик О.Г., Козырев А.Б.* // ФТТ. 1975. Т. 17. Вып. 3. С. 537–539.
- [4] *Vendik O.G.* // Ferroelectrics. 1976. Vol. 12. P. 85–90.
- [5] *Вендик О.Г.* // Сегнетоэлектрики в технике СВЧ. М.: Сов.-радио, 1979.
- [6] *Бузин И.М.* // ФТТ. 1976. Т. 18. Вып. 2. С. 1407–1411.
- [7] *Gevorgian S.S., Kaparkov D.I., Vendik O.G.* // IEEE Proc. Microw. Antennas Propag. 1994. Vol. 141. N 6. P. 501–503.
- [8] *Barrett J.A.* // Phys. Rev. 1952. Vol. 86. P. 118–120.
- [9] *Sakudo T., Unoki H.* // Phys. Rev. Lett. 1971. Vol. 26. N 14. P. 851–853.
- [10] *Агафонов Ю.А., Вендик О.Г., Горин Ю.Н.* и др. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1975. Т. 39. № 4. С. 841–845.
- [11] *Bethe K.* // Philips Research Report. Supplement. 1970. N 2. P. 1–145.
- [12] *Vendik O.G., Kollberg E., Gevorgian S.S.* et al. // Electron. Lett. 1995. Vol. 31. N 8. P. 654–655.
- [13] *Dedyk A.I., Plotkina N.W., Ter-Martirosyan L.T.* // Ferroelectrics. 1993. Vol. 144. N 1–4. P. 77–81.
- [14] *Смоленский Г.А.* // ДАН СССР. 1952. Т. 85. № 5. С. 985–987.
- [15] *Вендик О.Г., Козырев А.Б., Лоос Г.Д.* и др. // ФТТ. 1974. Т. 16. Вып. 1. С. 1222–1224.
- [16] *Galt D., Price J.C.* // Appl. Phys. Lett. 1993. Vol. 63. N 22. P. 3078–3080.