

# Диэлектрическая нелинейность аморфного материала $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{K}_x\text{O}_z$ ( $x = 0.2-0.3$ )

© С.А. Гриднев, Н.И. Репников

Воронежский государственный технический университет,  
394026 Воронеж, Россия

E-mail: repnikov@inbox.ru

Исследована зависимость диэлектрической проницаемости от напряженности постоянного электрического поля в аморфном материале  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{K}_x\text{O}_z$  ( $x = 0.2-0.3$ ). Обнаружено, что с увеличением напряженности постоянного электрического поля величина диэлектрической проницаемости уменьшается по квадратичному закону. Такое поведение диэлектрической проницаемости в постоянном электрическом поле свидетельствует о проявлении нелинейных диэлектрических свойств, которые могут быть описаны в рамках термодинамической теории сегнетоэлектричества.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 04-02-16418).

PACS: 77.22.Ch, 77.84.-s

Недавно появился ряд публикаций, в которых сообщается о возникновении спонтанно поляризованного состояния в полупроводниковых аморфных материалах  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{K}_x\text{O}_z$  ( $x = 0.1-0.4$ ) [1] и SbSI [2]. Если в [2] результаты объясняются на основе теории Лайнса [3], то в [1] авторы выдвигают иную гипотезу возникновения сегнетоэлектрического состояния в аморфных материалах. Согласно их предположению, сегнетоэлектрическое состояние в изученных аморфных материалах возникает в процессе получения массивных аморфных образцов методом быстрой закалки расплава, в результате чего образуется полярная текстура, связанная с действующими при закалке анизотропными механическими напряжениями. Экспериментальное подтверждение наличия сегнетоэлектрических свойств в аморфных образцах можно получить путем измерения диэлектрической нелинейности (зависимости диэлектрической проницаемости от напряженности электрического поля), характерной для сегнетоэлектриков.

Поэтому целью настоящей работы является изучение низкочастотных диэлектрических свойств аморфного материала  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{K}_x\text{O}_z$  ( $x = 0.2-0.3$ ) в сильном постоянном электрическом поле.

Образцы аморфного  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{K}_x\text{O}_z$  ( $x = 0.2-0.3$ ) получали сверхбыстрой закалкой расплава методом „молота и наковальни“, при этом средний размер выбранных для измерений образцов составлял величину  $\sim 0.5 \times 8 \times 8$  mm. Диэлектрические измерения проводились в интервале температур от комнатной до  $350^\circ\text{C}$  на частотах 0.1, 1 и 10 kHz с использованием измерителя иммитанса E7-14. Для измерения реверсивной нелинейности использовались поля в интервале от 0 до 10 kV/cm.

Методом дифференциального термического анализа (ДТА) была определена температура кристаллизации исследуемого материала  $T_{\text{cr}} \approx 400^\circ\text{C}$ . Кроме экзотермического пика, соответствующего температуре кристаллизации материала  $T_{\text{cr}}$ , на кривой ДТА были обнаружены

еще один экзотермический пик и два эндотермических пика. Два из них наблюдались ниже температуры кристаллизации и находились при  $T_c = 250-280^\circ\text{C}$  и при  $T_g = 330-350^\circ\text{C}$  в зависимости от состава, а третий — выше температуры кристаллизации при  $T = 490^\circ\text{C}$  (рис. 1). Низкотемпературный эндотермический пик, возможно, связан с переходом в аморфном  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{K}_x\text{O}_z$  ( $x = 0.2-0.3$ ), подобным фазовому переходу в кристаллических сегнетоэлектриках, что подтверждают измерения диэлектрической проницаемости на частотах 0.1, 1 и 10 kHz (рис. 2) и рассматриваемая далее зависимость диэлектрической проницаемости от напряженности постоянного электрического поля при разных температурах (рис. 3). Эндотермический пик при  $T_g$  на температурной зависимости сигнала ДТА (рис. 1) характеризует температуру стеклования исследуемого материала, а наличие высокотемпературного пика при

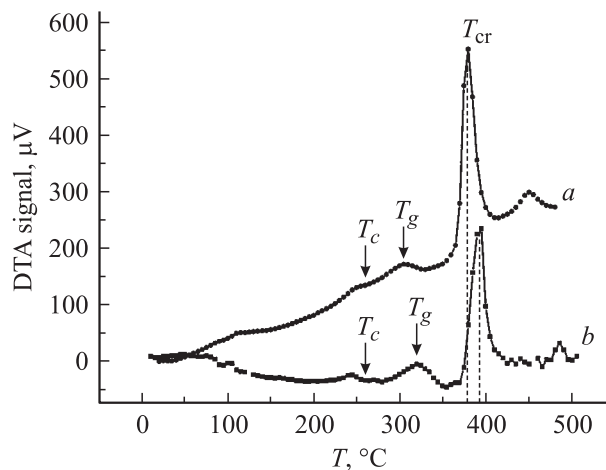
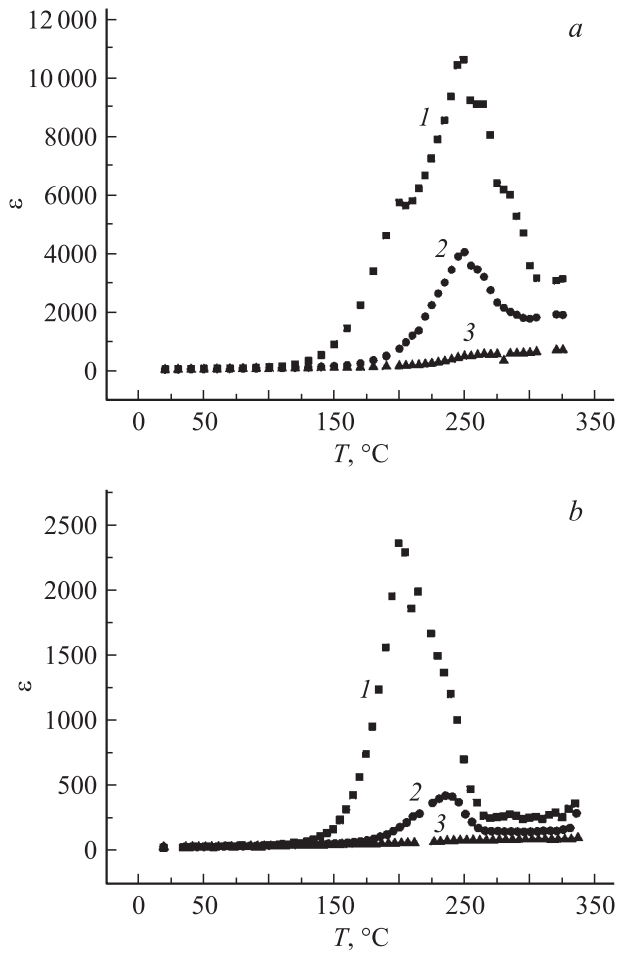


Рис. 1. Температурные зависимости сигнала ДТА для аморфных материалов  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{2.8}\text{K}_{0.2}\text{O}_z$  (a) и  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{2.7}\text{K}_{0.3}\text{O}_z$  (b).

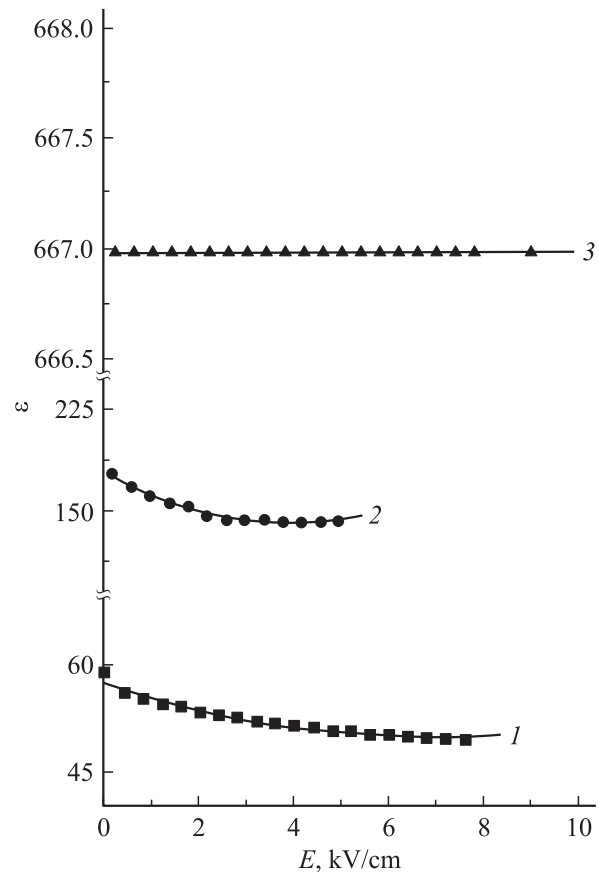


**Рис. 2.** Температурные зависимости диэлектрической проницаемости образцов  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{2.7}\text{K}_{0.3}\text{O}_z$  (a) и  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{2.8}\text{K}_{0.2}\text{O}_z$  (b), измеренные на частотах 0.1 (1), 1 (2) и 10 kHz (3).

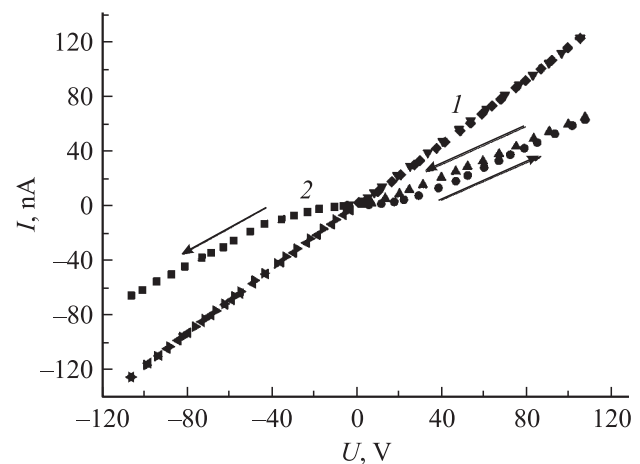
$T = 490^\circ\text{C}$ , по-видимому, свидетельствует о том, что процесс кристаллизации является многостадийным.

Для измерений диэлектрической нелинейности были использованы образцы  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{2.7}\text{K}_{0.3}\text{O}_z$  с серебряными электродами. Обнаружено, что с ростом напряженности электрического поля  $E$  от 0 до 10 kV/cm величина диэлектрической проницаемости понижается, так же как и в классических кристаллических сегнетоэлектрических материалах, при температурах ниже  $T_c$  (кривые 1 и 2) и не зависит от поля  $E$  выше  $T_c$  (рис. 3). Однако к нелинейной зависимости диэлектрической проницаемости от напряженности электрического поля может приводить не только нелинейность материала, но и барьер Шоттки, возникающий вблизи поверхности образца, если контакт образец–электрод не является омическим. Для проверки омичности такого контакта были измерены вольт-амперные характеристики (ВАХ) образцов с электродами из разных материалов (рис. 4). Видно, что при значениях напряжения  $U$  до 50 В контакт металл (электрод)–полупроводник (исследуемый образец) является нелинейным, но при

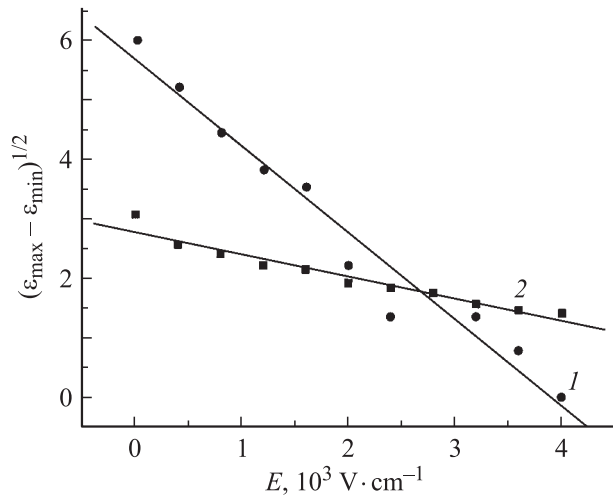
возрастании величины электрического напряжения на образце барьер Шоттки перестает сказываться и ВАХ становится линейной. Величина электрического напряжения, подаваемого на образец, достигала 400 В; следовательно, зависимость диэлектрической проницаемости



**Рис. 3.** Зависимости диэлектрической проницаемости от напряженности постоянного электрического поля в аморфном  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{2.7}\text{K}_{0.3}\text{O}_z$  при температурах 17 (1), 200 (2) и  $450^\circ\text{C}$  (3), измеренные на частоте 1.5 kHz.



**Рис. 4.** Вольт-амперные характеристики аморфного  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{2.8}\text{K}_{0.2}\text{O}_z$  с электродами In-Ga (1) и серебряными электродами (2) при температуре  $20^\circ\text{C}$ .



**Рис. 5.** Зависимости  $(\epsilon_{\max} - \epsilon_{\min})^{1/2}$  от  $E$ , построенные по данным рис. 3 для температур 200 (1) и 17°C (2).

от напряженности электрического поля является свойством исследуемого образца.

Для объяснения обнаруженной диэлектрической нелинейности можно использовать термодинамический подход [4]. Если рассматривать статический диэлектрический отклик и описывать его, используя разложение в степенной ряд по Ландау

$$E = \alpha P + \beta P^3 + \dots, \quad (1)$$

где  $P$  — поляризация, индуцированная электрическим полем  $E$ ,  $\alpha$  и  $\beta$  — термодинамические коэффициенты, то, пренебрегая нелинейными членами более высокого порядка в уравнении (1), можно получить связь между изменением диэлектрической проницаемости  $\Delta\epsilon = \epsilon_{\max} - \epsilon_{\min}$  и величиной напряженности электрического поля

$$\epsilon_{\max} - \epsilon_{\min} = -3\beta\epsilon_{\min}^4\epsilon_0^3E^2. \quad (2)$$

В этом выражении  $\epsilon_{\max}$  — максимальное значение диэлектрической проницаемости,  $\epsilon_{\min}$  — линейная статическая диэлектрическая проницаемость материала.

Для проверки выполнения соотношения (2) зависимость  $\Delta\epsilon$  от поля  $E$  была представлена в координатах  $(\epsilon_{\max} - \epsilon_{\min})^{1/2} - E$  (рис. 5). Видно, что зависимость изменения диэлектрической проницаемости от квадрата напряженности поля является линейной, что свидетельствует в пользу выполнения зависимости (2), полученной в предположении насыщения индуцированной поляризации в сильных постоянных электрических полях.

На основании полученных результатов можно сделать вывод, что аморфный материал  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{K}_x\text{O}_z$  ( $x = 0.2-0.3$ ) проявляет в сильном постоянном электрическом поле нелинейные диэлектрические свойства, которые могут быть описаны в рамках термодинамической теории сегнетоэлектричества.

## Список литературы

- [1] A.A. Bahgat, T.M. Kamel. Phys. Rev. B **63**, 12 101 (2001).
- [2] S.N. Kallaev, A.A. Babaev et al. Ferroelectrics **307**, 187 (2004).
- [3] M.E. Lines. Phys. Rev. B **15**, 1, 388 (1977).
- [4] S. Gridnev, A. Glazunov, A. Tsotsorin. Ferroelectrics **307**, 151 (2004).