

05.2;06;12

## **Влияние размерного эффекта на диэлектрическую проницаемость танталата калия, входящего в состав пленочного конденсатора**

© С.П. Зубко

С.-Петербургский государственный электротехнический университет

*Поступило в Редакцию 20 апреля 1998 г.*

Рассчитаны значения параметров феноменологической модели зависимости диэлектрической проницаемости объемных и пленочных образцов танталата калия от приложенного поля и температуры, а также значение корреляционного параметра, необходимое для учета влияния размерного эффекта. Получено хорошее совпадение теоретических расчетов с экспериментальными данными.

### **Введение**

В последнее время появилось много работ по экспериментальным исследованиям виртуального сегнетоэлектрика танталата калия  $\text{KTaO}_3$  [1–4]. Этот материал имеет меньшие по значению потери СВЧ, чем широко используемый и достаточно точно промоделированный титанат стронция  $\text{SrTiO}_3$ . Но ни монокристаллический танталат калия, ни тонкопленочный еще не имеют достоверного модельного описания. При сопоставимости толщины сегнетоэлектрической пленки и величины корреляционного радиуса диэлектрическая проницаемость пленки является функцией ее толщины. Данное явление называется размерным эффектом и является следствием корреляции сегнетоэлектрической поляризации.

Задача статьи заключается в разработке математических моделей для надежного описания диэлектрической проницаемости пленок танталата калия, входящих в состав пленочного конденсатора, с учетом влияния размерного эффекта.

# 1. Диэлектрическая проницаемость тонкопленочных образцов $\text{KTaO}_3$ . Размерный эффект

При моделировании зависимости диэлектрической проницаемости от приложенного электрического поля и температуры используется уравнение Гинзбурга–Девоншира [5,6] для сегнетоэлектрической поляризации, полученное из разложения в ряд свободной энергии.

Основное дифференциальное уравнение для сегнетоэлектрической поляризации в модифицированном виде [7]

$$-2\lambda_1 \frac{d^2 P(x)}{dx^2} + \frac{D(x)}{\varepsilon(T)} + \frac{D^3(x)}{D_N^2} = \varepsilon_0 E(x). \quad (1)$$

Граничные условия для случая металлических электродов:

$$P(x)|_{x=\pm h/2} = 0, \quad (2)$$

где  $h$  — толщина сегнетоэлектрического поля.

Решив уравнение (1) с учетом граничных условий (2) (решение данного уравнения и вывод формулы для  $\varepsilon_{eff}$  приведены в работах [8–10], там же см. ссылки на предшествующие работы), получим выражение для диэлектрической проницаемости с учетом корреляционных эффектов:

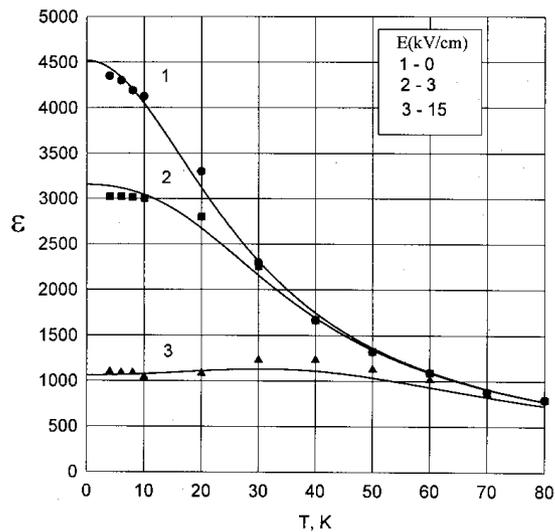
$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_{00} \left\{ \left[ (\xi^2 + \eta^3)^{1/2} + \xi \right]^{2/3} + \left[ (\xi^2 + \eta^3)^{1/2} - \xi \right]^{2/3} - \eta + a^2 \right\}^{-1}, \quad (3)$$

$$\eta(T) = (\theta_F/4T_c) \sqrt{1 + (4T/\theta_F)^2} - 1, \quad \xi(E) = \sqrt{\xi_S^2 + (E/E_N)^2},$$

$$a = \sqrt{\frac{2\varepsilon_{00}}{\alpha h}}, \quad \alpha = \frac{1}{2\lambda_1}, \quad (4)$$

где  $h$  — толщина сегнетоэлектрического слоя.

Функция  $\eta(T)$  является аппроксимацией дебаевского интеграла и отражает температурную зависимость  $\varepsilon_{eff}$ . Функция  $\xi(E)$  введена при усреднении сегнетоэлектрической поляризации.



**Рис. 1.** Зависимость диэлектрической проницаемости монокристаллического КТО от температуры при различных значениях приложенного поля  $E$ , экспериментальные точки [2].

Значения параметров модели представлены в таблице. Рис. 1 иллюстрирует экспериментальные и модельные зависимости  $\epsilon_{eff}(E, T)$  монокристаллического танталата калия [2].

Введенный в формуле (3) параметр  $a$  описывает меру влияния размерного эффекта на эффективную проницаемость материала. Размерный эффект подавляет диэлектрическую проницаемость материала. Численные значения модельных параметров для экспериментальных данных [3] приведены в таблице. Как видно из таблицы, значения параметров лежат в близком диапазоне для объемных и для пленочных образцов. Исключением является постоянная Кюри–Вейса  $C = \epsilon_{00}T_c$ . Для объемного образца  $C = 4.96 \cdot 10^4$ , для пленки  $C = 13.26 \cdot 10^4$ . Также и для титаната стронция постоянная Кюри–Вейса для монокристалла и для пленки различна [8–10]. На рис. 2 представлены экспериментальные точки и теоретические зависимости диэлектрической проницаемости тонкой пленки (толщина пленки  $h = 300 \text{ nm}$ ) [3] от температуры

Значения параметров модели

Образец	Параметры						
	$T_c$ , К	$\theta_F$ , К	$\varepsilon_{00}$	$\xi_s$	$E_N$ , kV/cm	$a$	$\delta _{E=0}$ , %
Объемный [2]	32.5	170	1390	0	15.6	–	3
Объемный [11]	31.6	187	1706	0	–	–	7
Пленка [3]	34	200	3900	3	16.5	7	2

и приложенного поля. Погрешность аппроксимации, рассчитанная по формуле  $\delta = \sqrt{\sum_{j=0}^n \sum_{i=0}^m \left[ (\varepsilon(T_j, E_i) - \varepsilon_{j,i})^2 \cdot \varepsilon_{j,i}^{-2} \right]} / nm$ , где  $\varepsilon_{j,i}$  — экспериментальные значения проницаемости,  $\varepsilon(T_j, E_i)$  — расчетные значения при тех же значениях температуры и поля, составляет  $\delta = 2\%$  при  $U = 0$ ;  $\delta = 3.7\%$  при  $U = 2$  V. Теоретические кривые рассчитаны по (3), (4) с использованием значений параметров, приведенных в таблице.

## 2. Расчет корреляционного параметра $\lambda_1$

Численные значения корреляционного параметра  $\lambda_1$  находится путем обработки фоновых спектров, полученных методом неупругого рассеяния нейтронов на мягкой моде кристалла танталата калия.

Дисперсионное уравнение для кубической среды имеет вид [12,13]:

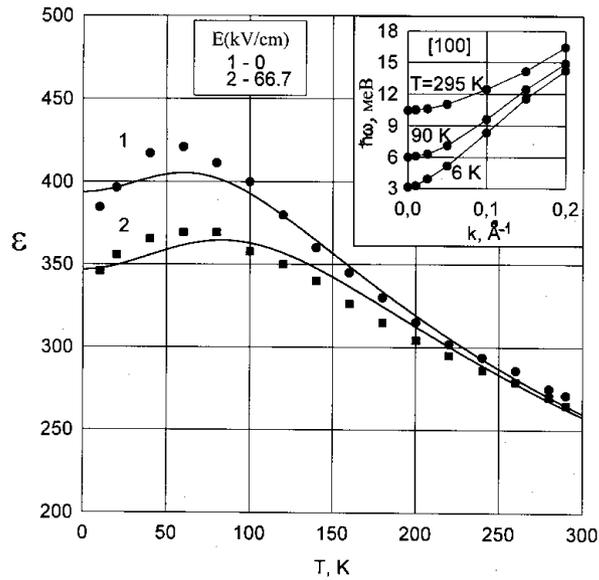
$$\left\{ [\omega_{0T}^2(0, T) - \omega^2 + s_T] (a_T k^2 - \omega^2) - k^4 v_T^2 \right\}^2 \times \left\{ [\omega_{0L}^2(0, T) - \omega^2 + s_L] (a_L k^2 - \omega^2) - k^4 v_L^2 \right\} = 0, \quad (5)$$

где

$$s_T = \frac{1}{A(T)} \lambda_3 \omega_{0T}^2(0, T), \quad s_L = \frac{3\varepsilon_\infty (\varepsilon_s(T) - \varepsilon_\infty)}{\varepsilon_s(T) (\varepsilon_\infty + 2)} \lambda_1 \omega_{0L}^2(0, T),$$

$$v_T^2 = \frac{1}{A(T)} \frac{\varepsilon_0}{\rho} \omega_{0T}^2(0, T) \theta_3^2, \quad v_L^2 = \frac{3\varepsilon_\infty (\varepsilon_s(T) - \varepsilon_\infty)}{\varepsilon_s(T) (\varepsilon_\infty + 2)} \frac{\varepsilon_0}{\rho} \omega_{0L}^2(0, T) \theta_1^2, \quad (6)$$

$$A(T) = (\varepsilon_\infty + 2) / 3 (\varepsilon_s(T) - \varepsilon_\infty), \quad (7)$$



**Рис. 2.** Зависимость диэлектрической проницаемости пленочного КТО от температуры при различных значениях приложенного поля  $E$ , экспериментальные точки [3]. Вставка: зависимость частоты поперечной оптической моды от волнового вектора [14] при различных температурах.

$\varepsilon_s$ ,  $\varepsilon_\infty$  — значения диэлектрической проницаемости, соответствующие частотам  $\omega \ll \omega_i$ ,  $\omega \gg \omega_i$  ( $\omega_i$  — собственная частота ионной компоненты поляризации). Для КТaO<sub>3</sub> (КТО)  $\varepsilon_\infty \cong 30$ ;  $s_t$  — параметр, имеющий размерность скорости, и для КТО  $s_t = (4.5 \pm 0.3) \cdot 10^{11} \text{ cm}^2/\text{s}^2$  [13].

Из решения уравнения (5) получим уравнения поперечных мод для трех направлений волнового вектора [13]:

$$k[100]: \frac{\omega^2(k, T)}{\omega_{0T}^2(0, T)} = 1 + \frac{\lambda_3 k^2}{A(T)}; \quad k[110]: \frac{\omega^2(k, T)}{\omega_{0T}^2(0, T)} = 1 + \frac{\lambda_1 - \lambda_2}{2A(T)} k^2;$$

$$k[111]: \frac{\omega^2(k, T)}{\omega_{0T}^2(0, T)} = 1 + \frac{\lambda_1 - \lambda_2 + \lambda_3}{3A(T)} k^2. \quad (8)$$

Из анализа экспериментальных данных [14] по зависимости частоты поперечной оптической моды от волнового вектора (вставка на рис. 2) и зависимости диэлектрической проницаемости монокристаллического танталата калия от температуры [2] с помощью соотношений (7), (8) получены следующие значения параметров:

$$\lambda_1 \cong 53.7 \cdot 10^{-20} \text{ м}^2; \quad \lambda_2 \cong 50.4 \cdot 10^{-20} \text{ м}^2; \quad \lambda_3 \cong 0.47 \cdot 10^{-20} \text{ м}^2.$$

В связи с отсутствием данных по дисперсии оптической моды в направлениях [110] и [111] значения  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  оценены ориентировочно. Свойства танталата калия подобны свойствам титаната стронция, так как они относятся к одной группе сегнетоэлектриков, следовательно, можно предположить, что зависимости частоты поперечной моды от волнового вектора при различных направлениях распространения соотносятся между собой в  $\text{KTaO}_3$  так же, как и в  $\text{SrTiO}_3$ .

Таким образом, вклад размерного эффекта в диэлектрическую проницаемость можно определить двумя способами: из обработки зависимости проницаемости от температуры и управляющего воздействия (экспериментальным путем) или рассчитать его, зная значение корреляционного параметра  $\lambda_1$ . Значение параметра  $a$ , вычисленное на основании (4) (при  $\lambda_1 \cong 53.7 \cdot 10^{-20} \text{ м}^2$  и  $h = 300 \text{ нм}$ ,  $a = 5.2$ ), близко к найденному из минимизации аппроксимационной ошибки (см. таблицу).

## Заключение

Таким образом, существенное отличие диэлектрической проницаемости объемных [2,12] и пленочных образцов [3] танталата калия определяется влиянием размерного эффекта при выполнении нулевых граничных условий для сегнетоэлектрической поляризации на электродах тонкопленочного сэндвич-конденсатора.

Полученные количественные характеристики позволят осуществлять моделирование управляемых устройств на танталате калия, функционирующих в СВЧ-диапазоне.

Автор выражает благодарность профессору О.Г. Вендику за помощь, оказанную при выполнении и обсуждении работы.

## Список литературы

- [1] Белокопытов Г.В., Иванов И.В., Сыромятников И.Ю. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 6. С. 1795–1800.
- [2] Belokopytov G.V. // *Ferroelectrics*. 1995. V. 168. P. 69–89.
- [3] Voikov Yu.A., Ivanov Z.G., Vasiliev A.L. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1995. V. 67. N 18. P. 2708–2710.
- [4] Klein R.S., Kugel G.E., Hennion B. // *J. Phys.: Condens. Matter*. 1996. V. 8. P. 1109–1114.
- [5] Гинзбург В.Л. // ЖЭТФ. 1949. Т. 19. С. 36–58.
- [6] Devonshire A.F. // *Phil. Mag.* 1949. V. 40. P. 1040–1065.
- [7] Вендик О.Г., Тер-Мартirosян Л.Т. // ФТТ. 1994. Т. 36. № 11. С. 3343–3351.
- [8] Вендик О.Г., Зубко С.П. // ЖТФ. 1997. Т. 67. № 3. С. 29–33.
- [9] Вендик О.Г., Зубко С.П., Тер-Мартirosян Л.Т. // ФТТ. 1996. Т. 38. № 12. С. 3654–3664.
- [10] Vendik O.G., Zubko S.P. // *J. Appl. Phys.* 1997. V. 82. N 9. P. 4475–4483.
- [11] Abel W.R. // *Phys. Rev.* 1971. V. B4. N 8. P. 2696–2701.
- [12] Вакс В.Г. Введение в микроскопическую теорию сегнетоэлектриков. М.: Наука, 1973. 328 с.
- [13] Вендик О.Г., Мироненко И.Г. // ФТТ. 1974. Т. 16. № 11. С. 3445–3451.
- [14] Axe J.D. // *Phys. Rev.* 1970. V. B1. N 3. P. 1227–1234.