

06,12

Переключение поляризации в перфорированных пленках сегнетоэлектрика

© К.А. Брехов¹, Н.А. Ильин¹, С.Д. Лавров¹, Н.Э. Шерстюк¹, Е.Д. Мишина¹, В.М. Мухортов²

¹ Московский государственный технический университет МИРЭА, Москва, Россия

² Южный научный центр РАН, Ростов-на-Дону, Россия

E-mail: brekhov_ka@mail.ru

(Поступила в Редакцию 14 апреля 2014 г.)

Экспериментально исследовано переключение поляризации в сегнетоэлектрических пленках титаната бария-стронция с встречно-штыревой планарной структурой электродов. Методом нелинейно-оптической микроскопии исследовано локальное распределение поляризации в этих пленках в зазоре между электродами при приложении электрического поля. Проведено сравнение параметров переключения поляризации для сплошной и перфорированной пленок.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты № 12-02-33158, 13-02-12450 офи_м2) и Министерства образования и науки РФ.

1. Введение

В большинстве устройств на основе сегнетоэлектрических материалов используется геометрия переключения сегнетоэлектрической поляризации в плоскости пленки.

Это связано с тем, что при наноразмерной толщине пленки существует возможность управлять состоянием ее поляризации при помощи сравнительно малых (менее 10 V) напряжений. Однако для ряда оптических и СВЧ-устройств, принцип работы которых основан на взаимодействии электромагнитных волн с поляризованным диэлектриком, более предпочтительной является планарная геометрия приложения электрического поля. При этом ключевое значение имеет поведение поляризации при приложении электрического поля.

Процессы переключения поляризации в сегнетоэлектрических тонких пленках при приложении электрического поля в плоскости пленки активно исследуются в настоящее время [1–3]. В частности, проводятся исследования по выявлению зависимости параметров переключения от состава и метода изготовления пленки [4], по выявлению влияния размерных эффектов на параметры переключения, а также влияния параметров переменного электрического поля [5–7]. Указанные параметры являются критически важными для исследования возможности реализации приборов и устройств на основе низкоразмерных сегнетоэлектрических структур.

Изготовление двумерных фотонных кристаллов на основе сегнетоэлектрических тонких пленок необходимо для расширения практического применения наноразмерных сегнетоэлектриков. Для электрооптических модуляторов и фазовращателей требуются сегнетоэлектрические пленки с высокой диэлектрической проницаемостью, малым временем переключения и малыми потерями

ми, причем пленки должны быть однородными по указанному параметру. Поэтому необходимы исследования распределения состояния поляризации по поверхности образца и в области электродов, а также исследования зависимости состояния поляризации от параметров приложенного внешнего электрического поля. Разворот поляризации в сплошной сегнетоэлектрической пленке происходит путем создания полярных кластеров с обратной поляризацией под действием поля, приложенного к сегнетоэлектрическим доменам [8]. Полярные кластеры возникают в непосредственной близости от дефектов за счет образования в их окрестности случайных полей. Плотность таких областей увеличивается экспоненциально с величиной приложенного поля в результате разрушения в структуре дальнего сегнетоэлектрического порядка и образования в мезомасштабе полидоменных состояний.

В работе [9] были проведены экспериментальные исследования методом генерации второй оптической гармоники (ВГ) переключения сегнетоэлектрической поляризации в „толстой“ (70 nm) пленке титаната бария-стронция и двумерном фотонном кристалле на ее основе. Исследовался интегральный (с области 50 μm) нелинейно-оптический отклик системы, состоящей из сплошной сегнетоэлектрической пленки с нанесенными на ее поверхность встречно-штыревыми электродами, а также проводилось сравнение с аналогичными результатами для перфорированной пленки. Было показано, что фотонно-кристаллическая (ФК) структура вносит ощутимый вклад в интегральный отклик второй оптической гармоники, что свидетельствует о сильном изменении распределения поляризации в перфорированной пленке по сравнению с характерным для неперфорированной.

В работе [10] были представлены теоретические исследования и моделирование процессов формирования

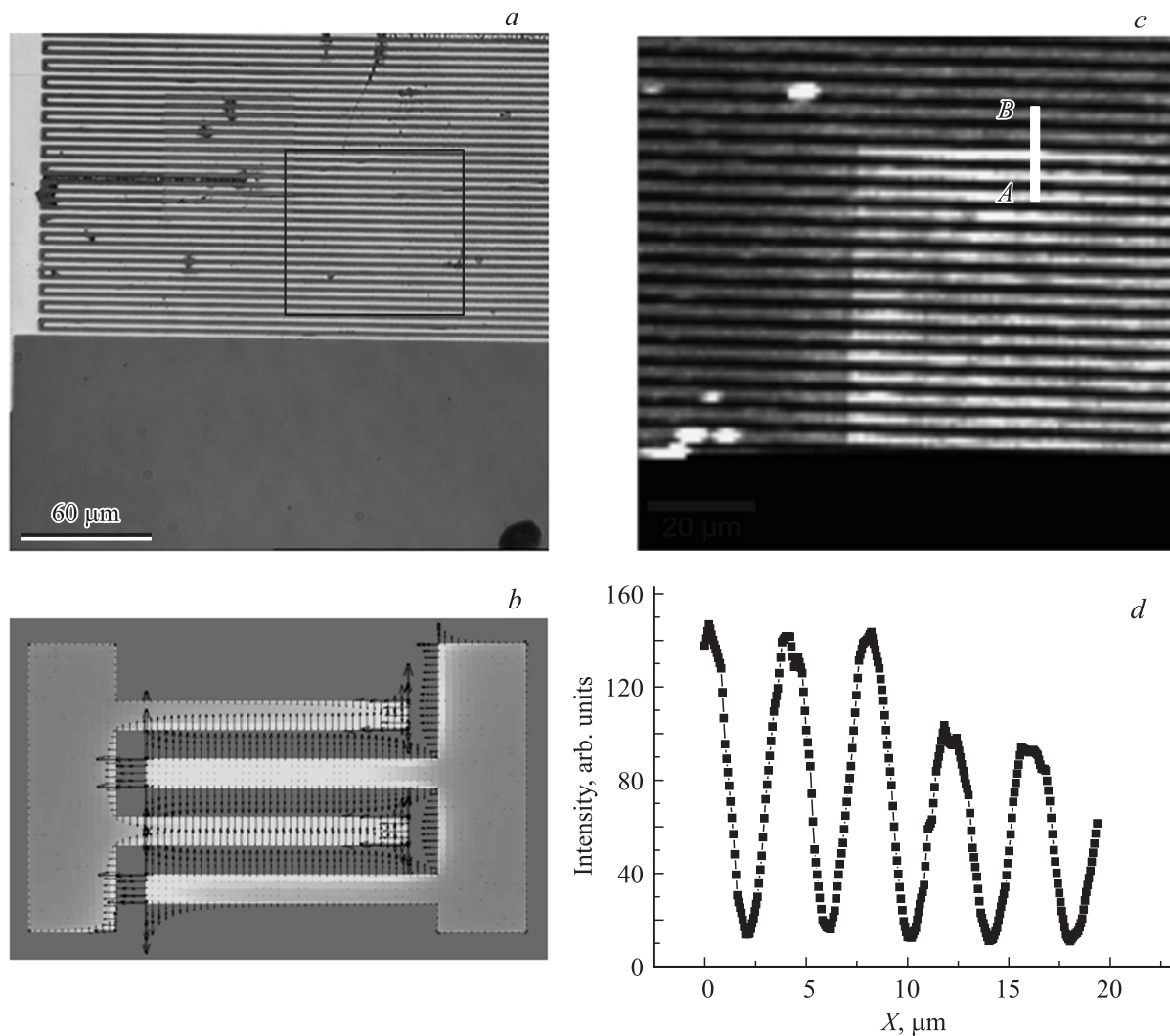


Рис. 1. *a)* Микроскопическое изображение пленки BST (темные полосы) с нанесенной на поверхность встречно-штыревой системой электродов (светлые полосы). Область локализации ФК-структуры выделена квадратом. *b)* Схема распределения электрического поля в зазоре между электродами ВШП. *c)* Конфокальное изображение исследуемой структуры на длине волны второй гармоники (400 nm) в отсутствие электрического поля. *d)* Зависимость интенсивности ВГ от координаты вдоль линии АВ. Точка А находится в области ФК-структуры, точка В — в неперфорированной области.

доменной структуры в перфорированных пленках сегнетоэлектрика. Было показано, что перфорирование пленки сегнетоэлектрика приводит к значительным неоднородностям доменной структуры, особенно вблизи поверхности поры и на границах отверстий. Представленная в работе модель содержала малое число отверстий (16), и, по мнению авторов, ее расширение на большее число отверстий некорректно.

В настоящей работе для уточнения границ применимости разработанных моделей и получения информации, необходимой для предсказания свойств ФК-структур, проведены локальные экспериментальные исследования особенностей переключения сегнетоэлектрической поляризации в перфорированной пленке сегнетоэлектрика, картирование состояния поляризации в зависимости от параметров приложенного электрического поля, а также

сравнение полученных данных с параметрами переключения в неперфорированных пленках.

2. Эксперимент

Экспериментальный образец эпитаксиальной пленки титаната бария-стронция (BST) толщиной $1\ \mu\text{m}$ был нанесен методом высокочастотного распыления на подложку MgO (100). Для приложения постоянного электрического поля на поверхность образца была нанесена встречно-штыревая система электродов (ВШП) с зазором между электродами $2\ \mu\text{m}$ и периодом $4\ \mu\text{m}$, позволяющая прикладывать поле в плоскости пленки. ФК-структура размером $50 \times 50\ \mu\text{m}$ была сформирована в зазорах между электродами методом травления фокуси-

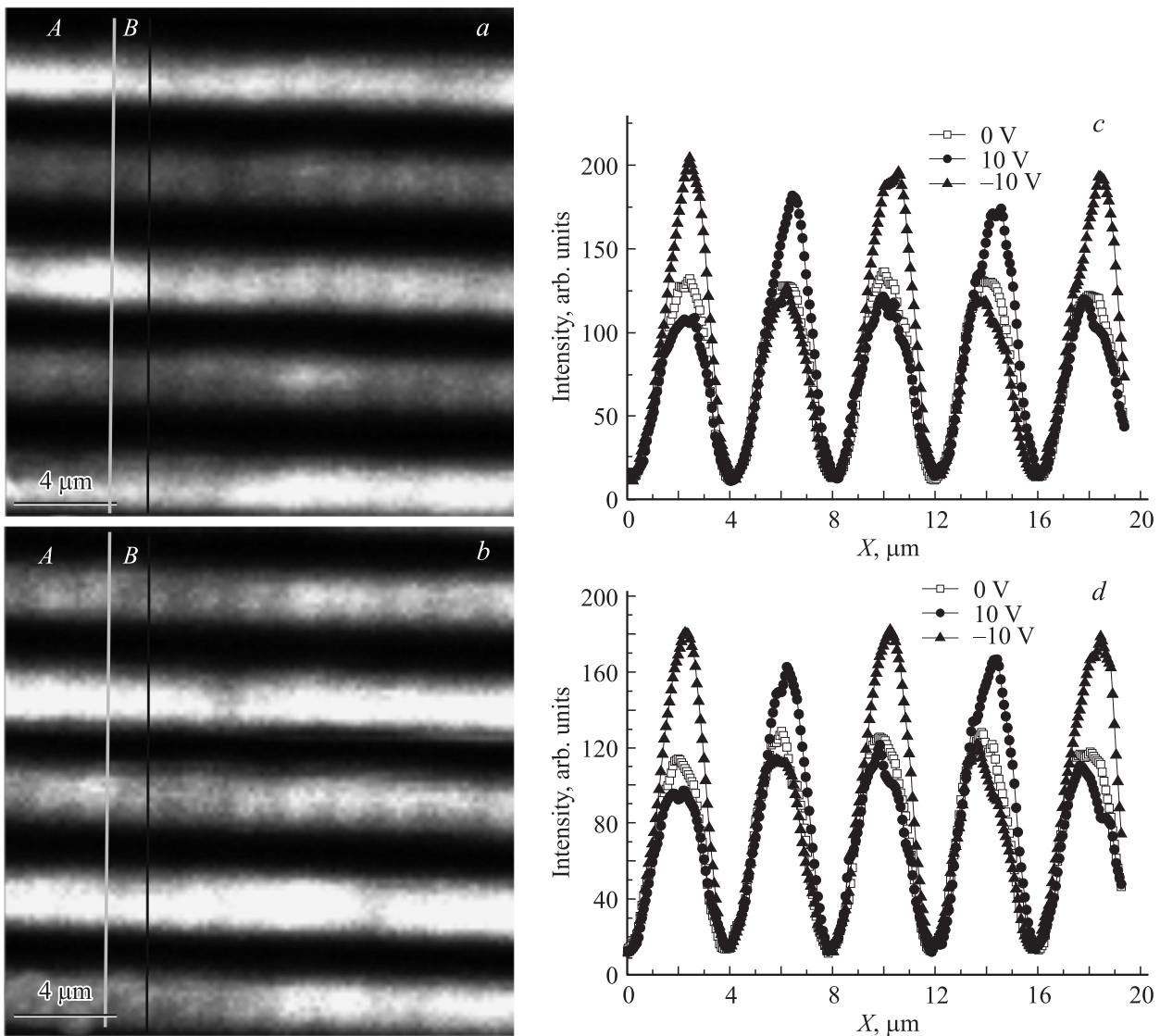


Рис. 2. Конфокальные изображения ФК-структуры на длине волны ВГ при приложении электрического поля противоположных направлений: +10 (a) и -10 V (b). Зависимости интенсивности ВГ от координаты вдоль линии A, проходящей через отверстия ФК-структуры (c), и линии B, проходящей через промежутки между отверстиями (d).

рованным ионным пучком с использованием микроскопа Quanta 3D компании FEI, травление осуществлялось ионами галлия; диаметр отверстия составлял 880 nm, глубина — 1 μm. Ток травления составлял 0.5 nA. Микроскопическое изображение полученной структуры представлено на рис. 1, a. В линейном оптическом изображении при данном пространственном разрешении особенности ФК-структуры неразличимы, область локализации ФК отмечена на рисунке квадратом. Более детально эта структура исследована в нелинейно-оптическом режиме, поскольку из-за концентрации мощности (характеризующейся распределением Гаусса) в центре лазерного пятна сигнал ВГ регистрируется от области, меньшей лазерного пятна, что позволяет увеличить разрешение используемого метода.

Моделирование распределения электрического поля в зазоре между электродами показало, что поле в зазоре вдали от концов электродов имеет однородный характер (рис. 1, b); следовательно, все неоднородности в распределении поляризации по поверхности зазора обусловлены свойствами сегнетоэлектрической пленки и ФК-структуры.

Исследование состояния поляризации проводилось при помощи методики нелинейно-оптической микроскопии, основанной на пропорциональности интенсивности второй оптической гармоники квадрату сегнетоэлектрической поляризации, состоящей из двух частей: переключаемой и неперключаемой [11]. Для микроскопии использовалась конфокальная мода модифицированного ближнепольного/конфокального микроскопа

Alfa 300 S+ (производитель Witec) с объективом $\times 20$, что обеспечивало в нелинейном режиме пространственное разрешение порядка $1 \mu\text{m}$. В качестве источника возбуждения использовался импульсный лазер на кристалле сапфира, допированного ионами титана (производитель ООО „Авеста-Проект“), с длиной волны 800 nm , частотой повторения 100 MHz , длительностью импульса 100 fs .

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1, *c* показано конфокальное изображение исследуемой структуры на длине волны второй гармоники (400 nm) в отсутствие электрического поля. Из рисунка видно, что ФК-структура имеет заметно более интенсивный отклик по сравнению с неперфорированным сегнетоэлектриком и электродной областью. Распределение интенсивности ВГ вдоль линии *AB* представлено на рис. 1, *d*. Показано, что интенсивность ВГ в зазоре, содержащем перфорацию, заметно выше интенсивности в неперфорированной области.

На рис. 2, *a, b* представлены конфокальные микроскопические изображения на длине волны ВГ области 2D ФК-структуры при различных напряжениях на электродной структуре. Из рисунка видно, что яркость соседних межэлектродных областей различна и существенно зависит от напряжения, причем при изменении знака напряжения более яркая полоса становится менее яркой, и наоборот (наблюдается асимметрия нелинейно-оптического отклика относительно приложенного напряжения). Такое поведение локальной интенсивности ВГ связано с тем, что поле в соседних межэлектродных зазорах направлено в противоположные стороны (рис. 1, *b*). Асимметрия интенсивности ВГ относительно знака поля объясняется наличием в структуре непереключаемой поляризации [11]

$$I^{2\omega}(U) = (E_{bg}^{2\omega})^2 + \xi(P_0 + \alpha U)^2, \quad (1)$$

где $E_{bg}^{2\omega}$ — некогерентная составляющая не зависящей от внешнего поля (непереключаемой) части поля ВГ, ξ — коэффициент, зависящий от переключения, P_0 — представляет собой суммарный вклад остаточной поляризации и когерентной составляющей отклика от непереключаемой поляризации, α — константа, величина которой может быть оценена как [11]

$$\alpha = \chi^{(0)}(\varepsilon - 1). \quad (2)$$

Здесь $\chi^{(0)}$ — диэлектрическая восприимчивость среды, ε — диэлектрическая проницаемость.

Для количественной характеристики обнаруженной асимметрии на микроскопических конфокальных изображениях исследованы сечения по линиям, показанным на рис. 2, *a, b*, для ФК-структуры, а также для неперфорированной области. Соответствующие зависимости интенсивности ВГ от координаты по линиям сечений представлены на рис. 2, *c, d*.

При перфорировании существенно (в 1.5 раза по сравнению с неперфорированной пленкой) увеличивается интенсивность ВГ, а значит, и локальное значение сегнетоэлектрической поляризации (рис. 1, *d*). Асимметрия зависимости интенсивности ВГ от приложенного поля, а также ее высокое значение в отсутствие электрического поля свидетельствуют о существенном вкладе непереключаемой доли поляризации. Непереключаемая поляризация в сегнетоэлектриках связывается с пиннингом доменов вблизи поверхности и наблюдалась ранее в мезоскопических структурах на основе $\text{Pb}(\text{ZrTi})\text{O}_3$ [12,13].

По данным моделирования, проведенного в работе [10], было показано, что в промежутках между отверстиями перфорации наблюдается значительная неоднородность распределения поляризации. Такое распределение должно вызывать соответствующее распределение интенсивности ВГ в соответствии с соотношением (1). Однако при данном пространственном разрешении (диаметр лазерного пятна в плоскости образца $2 \mu\text{m}$) невозможно выявить локальный нелинейно-оптический отклик на границе отверстия.

При теоретическом расчете и моделировании распределения поляризации в перфорированном сегнетоэлектрике следует также принимать во внимание то, что структура вещества на границе и на внутренней поверхности отверстия может быть различной.

Это может быть связано с тем, что в процессе травления на границе отверстия образуются наслоения материала, выбитого высокоэнергетическими ионами из объема пленки. Эти наслоения имеют, вероятнее всего, аморфную структуру либо кристаллизуются на наномасштабе хаотически, поскольку условия обратного осаждения вещества достаточно случайны [14]. В то же время воздействие ионов галлия, используемых при травлении, на внутреннюю поверхность отверстия может приводить к появлению на ней дополнительного заряда, что ведет

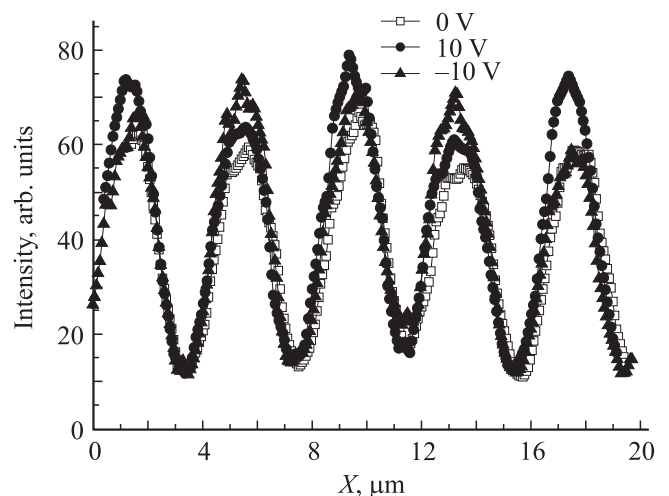


Рис. 3. Зависимость интенсивности ВГ от координаты, характеризующая переключение поляризации в области, не содержащей перфорации.

к усилению значений локальных полей, а следовательно, и наведенной поляризации. При сравнительно малой глубине отверстия дополнительный заряд может вносить заметный вклад в суммарную интенсивность ВГ.

Измеренный контраст переключения поляризации как отношение максимальной интенсивности ВГ в зазоре к минимальной практически совпадал для отверстия и промежутка между отверстиями: 1.68 и 1.72 соответственно. Это может свидетельствовать о том, что переключаемая часть сегнетоэлектрической поляризации не зависит от перфорации.

Для сравнения было исследовано переключение поляризации в области, не содержащей перфорации (рис. 3). Было показано, что контраст переключения для всех исследованных областей ниже, чем для перфорированной пленки и составляет приблизительно 1.2. При этом следует отметить, что зависимость ВГ от знака приложенного поля имеет существенно более симметричный характер, чем в области перфорации, что свидетельствует о малом вкладе непереключаемой поляризации в нелинейно-оптический отклик пленки.

4. Заключение

Таким образом, представленные в работе исследования демонстрируют микроскопическую картину распределения поляризации в перфорированной пленке BST — двумерном фотонном кристалле. Наблюдаемое увеличение поляризации по сравнению с неперфорированной пленкой может быть связано с формированием под действием ионного пучка новых локальных полей в области отверстия ФК-структуры. Образовавшиеся в результате домены пиннингуются к внутренней поверхности воздушного канала, уменьшая таким образом переключаемость поляризации. Тем не менее относительное изменение поляризации при приложении поля оказывается более высоким, чем на неперфорированной пленке. Полученные данные должны приниматься во внимание при моделировании свойств фотонных кристаллов на основе сегнетоэлектрических тонких пленок, а также при разработке электрооптических модуляторов и других переключаемых устройств на их основе.

Список литературы

- [1] C. Dubourdieu, J. Bruley, Th. Arruda, A. Posadas, J. Jordan-Sweet, M.M. Frank, E. Cartier, D.J. Frank, S.V. Kalinin, A.A. Demkov, V. Narayanan. *Nature Nanotechnol.* **8**, 748 (2013).
- [2] C. Lu, S. Dong, Z. Xia, H. Luo, Z. Yan, H. Wang, Z. Tian, S. Yuan, T. Wu, J. Liu. *Sci. Rep.* **3**, 3374 (2013).
- [3] B.J. Rodriguez, A. Gruverman, A.I. Kingon, R.J. Nemanich, J.S. Cross. *Appl. Phys. A* **80**, 1, 99 (2005).
- [4] W.K. Chen, C.M. Cheng, J.Y. Huang, W.F. Hsieh, T.Y. Tseng. *J. Phys. Chem. Solids.* **61**, 3, 969 (2000).
- [5] K. Matyjasek, J. Dec, S. Miga, T. Lukaszewicz. *Cond. Matter Phys.* **16**, 3, 31 701 (2013).
- [6] M. Dubreuil, S. Rivet, B. Le Jeune, L. Dupont. *Opt. Lett.* **35**, 7, 1019 (2010).
- [7] P. Yu, Y.H. Chu, R. Ramesh. *Phil. Trans. Roy. Soc. A* **28**, 1977, 4856 (2012).
- [8] D. Viehland, Y.-H. Chen. *J. Appl. Phys.* **88**, 11, 6696 (2000).
- [9] E. Mishina, A. Zaitsev, N. Ilyin, N. Sherstyuk, A. Sigov, Yu. Golovko, V. Muhortov, A. Kolesnikov, Yu. Lozovik, M. Yemtsova. *Appl. Phys. Lett.* **91**, 041 107 (2007).
- [10] А.П. Леванюк, I.B. Misirlioglu, Е.Д. Мишина, А.С. Сигов. *ФТТ* **54**, 11, 2109 (2012).
- [11] Н.Э. Шерстюк, Н.А. Ильин, С.В. Семин, Е.Д. Мишина, В.М. Мухортов. *ФТТ* **51**, 1284 (2009).
- [12] Д.А. Киселев, А.Л. Холкин, А.А. Богомолов, О.Н. Сергеева, Е.Ю. Каптелов, И.П. Пронин. *Письма в ЖТФ* **34**, 15, 28 (2008).
- [13] Ch. Kittel. *Introduction to solid state physics*. 8th ed. Wiley NY (2004). 704 p.
- [14] К.А. Брехов, С.Д. Лавров, Н.А. Ильин, Н.Э. Шерстюк, А.С. Сигов, В.М. Мухортов, Е.Д. Мишина. *Изв. РАН. Сер. физ.* **77**, 10, 1539 (2013).