

06

## Оптическая анизотропия и диэлектрические характеристики пленок (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> на подложке Pt(111)/Si(001)

© А.П. Ковтун<sup>1</sup>, С.П. Зинченко<sup>1,3</sup>, А.В. Павленко<sup>1,2</sup>,  
Г.Н. Толмачев<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Южный научный центр РАН, Ростов-на-Дону

<sup>2</sup> Научно-исследовательский институт физики Южного федерального университета, Ростов-на-Дону

<sup>3</sup> Южный федеральный университет, Ростов-на-Дону

E-mail: tolik\_260686@mail.ru

Поступило в Редакцию 27 мая 2016 г.

Методом высокочастотного газоразрядного напыления в атмосфере чистого кислорода синтезированы пленки (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> на подложке Pt(111)/Si(001). Установлено, что пленки обладают преимущественной кристаллографической ориентацией в направлении [001] и естественной униполярностью, выявленной при анализе диэлектрических и пьезоэлектрических характеристик. Показано, что в гетероструктуре (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>, Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>/Pt(111)/Si(001) материал пленки по оптическим характеристикам соответствует таковому в монокристалле (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>.

Гетероструктуры на основе оксидных сегнетоэлектрических пленок являются перспективными средами для современной функциональной микро- и нанoeлектроники [1]. Именно поэтому в настоящее время в материаловедении большое внимание уделяется синтезу и исследованию свойств тонких пленок Ba<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub>, PbTi<sub>1-x</sub>Zr<sub>x</sub>O<sub>3</sub> и Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> на различных подложках (MgO, Si, SrTiO<sub>3</sub>) [1–4]. Данная работа посвящена исследованию оптических и диэлектрических характеристик пленок (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> (BSN) на подложке Pt(111)/Si(001).

Высокочастотное газоразрядное напыление пленок BSN производилось в атмосфере чистого кислорода согласно методике, описанной в [4]. Керамическая мишень BSN была изготовлена в отделе ИМиНТ НИИ физики ЮФУ. Рентгенографические исследования проводили на

дифрактометре ДРОН-3, снабженном интенсиметром ИР-2 с рентгеновской Cu-трубкой. Полевые зависимости относительной диэлектрической проницаемости ( $\varepsilon/\varepsilon_0$ ) и тангенса угла диэлектрических потерь ( $\text{tg } \delta$ ) на частоте  $10^6$  Hz измеряли с помощью прецизионного анализатора импеданса Wayne Kerr 6500 В, а петли диэлектрического гистерезиса ( $P(U)$ ) на частоте 200 Hz — с помощью измерительного комплекса на базе TF Analyzer 2000. Оптические свойства пленок анализировались с использованием измеренной угловой зависимости интенсивности зеркально отраженного зондирующего излучения  $E$ - и  $H$ -поляризаций от структуры пленка–подложка (в дальнейшем — кривые зеркального отражения). Для измерения в относительных единицах таких кривых использовалась лабораторная установка, подробно описанная в работе [5,6]. Управление установкой и регистрация экспериментальных данных осуществлялись специализированным аппаратно-программным комплексом. В качестве источника зондирующего излучения использовался твердотельный лазерный модуль с длиной волны  $\lambda = 650$  nm и возможностью его модуляции. Выбор необходимой поляризации излучения осуществлялся внешним поляризатором Николя. Для устранения влияния внешних возмущений на результаты измерений все элементы схемы располагались на голографическом столе, а модулированное зондирующее излучение регистрировалось и усиливалось в режиме синхронного детектирования.

На рентгенограмме исследуемой структуры BSN/Pt(111)/Si(001) (рис. 1) присутствовали: рефлекс (111) от слоя платины и два рефлекса (001) и (002) от пленки BSN. Отсутствие других рефлексов, соответствующих BSN, свидетельствует о преимущественной кристаллографической ориентации в пленке в направлении [001]. Параметр  $c$  элементарной ячейки пленки равен  $3.945 \text{ \AA}$  и близок к таковому в мишени ( $a = 12.458 \text{ \AA}$ ,  $c = 3.943 \text{ \AA}$ ). Следов других фаз не обнаружено.

При исследовании пьезоэлектрической активности объекта установлено, что полученной пленке свойственна естественная униполярность (после нанесения электродов фиксировался пьезомодуль  $d_{33} = 5\text{--}7 \text{ pC/N}$ ), которая проявилась при анализе зависимостей  $P(U)$ ,  $\varepsilon/\varepsilon_0(U)$  и  $\text{tg } \delta(U)$ , представленных на рис. 2. Как видно из рисунка, петли имели вытянутую форму и характеризовались асимметрией, что свидетельствует о внутреннем поле в пленке. Остаточная поляризация  $P_r \sim 1.2 \mu\text{C/cm}^2$  сопоставима с таковой в монокристаллах и керамике соответствующего состава [7]. Кривые  $\varepsilon/\varepsilon_0(U)$  и  $\text{tg } \delta(U)$  имели вид,

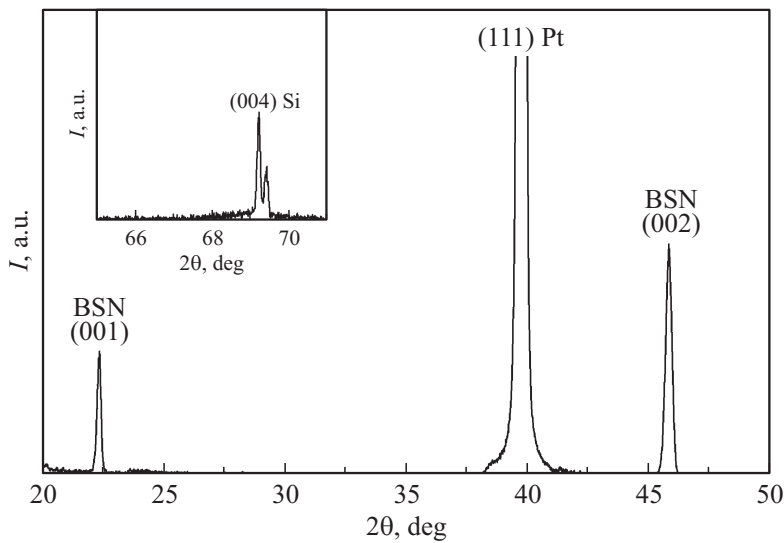
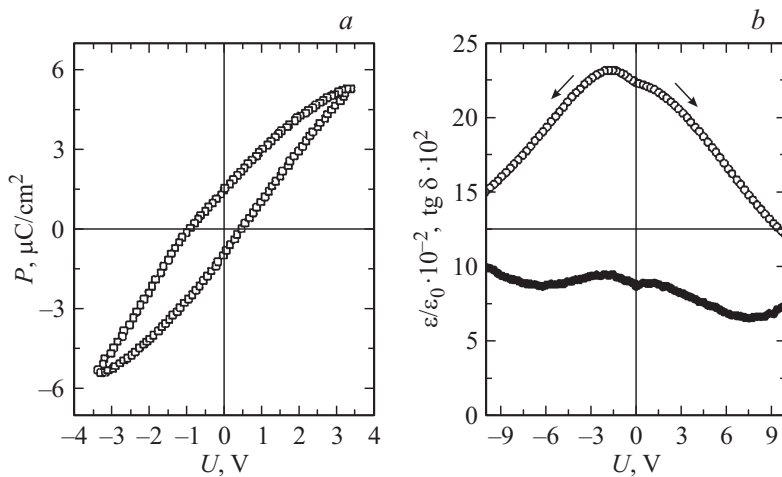


Рис. 1. Дифрактограмма гетероструктуры BSN/(111)Pt/(001)Si.

типичный для сегнетоэлектриков, характеризовались незначительной асимметрией, практически отсутствием гистерезиса и высокой диэлектрической управляемостью ( $\varepsilon/\varepsilon_0(U = 0\text{ V})/\varepsilon/\varepsilon_0(U = U_{\max}) > 2$ ).

Оптические свойства пленок исследовались путем согласования теоретических и экспериментальных кривых зеркального отражения. С учетом приведенных выше результатов исследования структуры и диэлектрических характеристик гетероструктуры BSN/Pt(111)/Si(001), а также результатов работ [4] теоретические кривые зеркального отражения рассчитывались с использованием модели оптически анизотропной пленки (материал пленки представляет собой одноосный оптически однородный кристалл BSN, ось которого перпендикулярна поверхности) на оптически изотропной подложке (Pt) с известными параметрами. В этом случае с учетом [8] коэффициент отражения от прозрачной пленки (среда 2) на поглощающей подложке (среда 3) можно записать в виде

$$R(\theta) = \frac{r_{12}^2 + r_{23}^2 + 2r_{12}r_{23} \cos[2\psi + \alpha_{23} - \alpha_{12}]}{1 + r_{12}^2 r_{23}^2 + 2r_{12}r_{23} \cos[2\psi + \alpha_{23} + \alpha_{12}]}. \quad (1)$$



**Рис. 2.** Зависимости  $P(U)$  (a),  $\epsilon/\epsilon_0(U)$  и  $\text{tg } \delta(U)$  (b) структуры Al/Cr/BSN/Pt(111)/Si(001) при комнатной температуре.

При выводе этой формулы учитывалось следующее. В соответствии с [8] комплексную амплитуду  $\hat{r}_{23}$  можно вычислить без знания угла преломления луча в материале пленки

$$\hat{r}_{23} = \frac{\hat{r}_{12} - \hat{r}_{13}}{\hat{r}_{12}\hat{r}_{13} - 1} = r_{23} \exp(i\alpha_{23}), \tag{2}$$

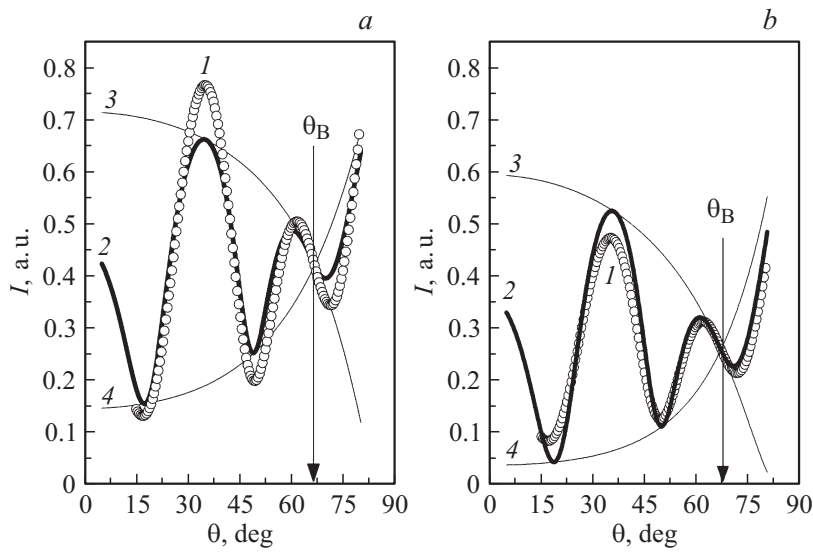
где  $r_{23}$  — положительная величина,  $\alpha_{12}$  и  $\alpha_{23}$  — фазы отражения, а  $\hat{r}_{13}(\theta)$  представляются формулами Френеля.

Амплитуды отражения  $\hat{r}_{12}$   $E$ - или  $H$ -волн как функции угла зеркального отражения  $\theta$  в случае оптически анизотропной среды 2 можно записать в виде

$$\hat{r}_{12}^{(E)} = \frac{\cos \theta - \sqrt{n_o^2 - \sin^2 \theta}}{\cos \theta + \sqrt{n_o^2 - \sin^2 \theta}}, \quad \hat{r}_{12}^{(H)} = \frac{n_o n_e \cos \theta - \sqrt{n_e^2 - \sin^2 \theta}}{n_o n_e \cos \theta + \sqrt{n_e^2 - \sin^2 \theta}}, \tag{3}$$

где  $n_o$  и  $n_e$  — показатели преломления среды 2 для обыкновенного и необыкновенного лучей. Фазы  $E$ - и  $H$ -волн, в свою очередь, для

4\* Письма в ЖТФ, 2016, том 42, вып. 11



**Рис. 3.** Экспериментальная (1) и теоретическая (2) зависимости интенсивности оптического зеркально отраженного излучения  $H$ -поляризации с  $\lambda = 650$  nm от пленки BSN соответственно; огибающая  $R^{(+)}$  (3); огибающая  $R^{(-)}$  (4). Расчеты для случая пленки BSN:  $a$  — на „чистой“ платине,  $b$  — на подложке, составленной из смеси Pt (70%) и BSN (30%).

анизотропного случая различны:

$$\psi^{(E)} = \frac{2\pi}{\lambda} h \sqrt{n_o^2 - \sin^2 \theta}, \quad \psi^{(H)} = \frac{2\pi}{\lambda} h \frac{n_o}{n_e} \sqrt{n_e^2 - \sin^2 \theta}, \quad (4)$$

где  $h$  — толщина среды 2.

В нашем случае экспериментальные кривые зеркального отражения регистрировали в относительных единицах, с точностью до некоторого неизвестного множителя  $\beta$  соответствующих коэффициенту отражения  $R$ . Для определения  $\beta$  введем две дополнительные функции

$$R^{(+)}(\theta) = \left[ \frac{r_{23} + r_{12}}{1 + r_{23}r_{12}} \right]^2, \quad R^{(-)}(\theta) = \left[ \frac{r_{23} - r_{12}}{1 - r_{23}r_{12}} \right]^2. \quad (5)$$

Оптические константы монокристаллов и пленок твердых растворов  $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$

$n_o$	$n_e$	Примечание
2.30863	2.27937	$\lambda = 650 \text{ nm}$ (кристалл с $x = 0.61$ ) [10]
2.3123	2.2734	$\lambda = 632.8 \text{ nm}$ (кристалл с $x = 0.50$ ) [11]
2.303	2.260	$\lambda = 650 \text{ nm}$ (наша пленка)

Эти функции являются огибающими ( $R^{(+)}$  — сверху и  $R^{(-)}$  — снизу) угловой зависимости коэффициента отражения (1) и касаются ее в точках, при которых  $\cos[2\psi(\theta) - \alpha_{23}(\theta)] = \pm 1$ , при этом при любом угле отражения должно выполняться соотношение

$$R^{(-)}(\theta) \leq R(\theta) \leq R^{+}(\theta). \tag{6}$$

Сосредоточим наше внимание на кривых отражения  $H$ -поляризации. При угле Брюстера (когда  $r_{12}^{(H)}(\theta_B = 0)$ ) функции (1) и (5) пересекаются в одной точке (в дальнейшем  $H$ -точке). Естественно, что и экспериментальная кривая должна пройти через эту точку, что и позволяет нам определить  $\beta$ .

На рис. 3 представлены экспериментальные и теоретические кривые, рассчитанные по формуле (1) с учетом (2)–(5). Для расчета  $\hat{r}_{13}^{(H)}$  в (4) использовались рассчитанные для  $\lambda = 650 \text{ nm}$  в соответствии с [9] показатель преломления платины  $n_3 = 2.38$ , коэффициент поглощения  $k_3 = 4.26$ , а в качестве уточняемых параметров при согласовании теории с экспериментом служили  $n_o$ ,  $n_e$  и  $h$  пленки. При аппроксимации наилучшее согласование для структуры BSN(001)/Pt(111) было достигнуто при  $n_o = 2.30$ ,  $n_e = 2.26$ ,  $h = 2907 \text{ nm}$  (рис. 3, *a*), однако экспериментальная кривая не удовлетворяет условию (6). Оказалось, что соотношение (6) выполняется, если коэффициент поглощения подложки уменьшить. Полагаем, что пленка BSN „лежит“ на некоторой „эффективной“ подложке, представляющей собой, например, смесь платины и материала пленки. На рис. 3, *b* представлены результаты согласования экспериментальных результатов и расчетов для той же пленки, но на подложке с „эффективным“ комплексным показателем преломления  $\hat{n}_3 = 2.35 + i \cdot 2.99$  (эта величина рассчитана по формуле

$\hat{n}_{3'} = \eta \hat{n}_3 + (1 - \eta)n_o$ , в которой параметр  $\eta = 0.7$  и описывает относительную долю платины в переходном слое как смеси платины и пленки BSN). Непосредственными расчетами по формулам Френеля можно показать, что глубина проникновения света в переходный слой с  $k \approx 3$  составляет 30–40 nm, и если толщина переходного слоя больше этой величины, то наше предположение о модифицированной подложке физически корректно. Как видно из таблицы, полученные в работе значения  $n_o$  и  $n_e$  пленки BSN согласуются с данными, измеренными для монокристаллов другими авторами и другими методами.

Таким образом, методом ВЧ газоразрядного напыления получена гетероструктура  $(\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5})\text{Nb}_2\text{O}_6/(111)\text{Pt}/(001)\text{Si}$ . На основе данных рентгенографических, диэлектрических и оптических исследований показано, что материал пленки BSN по оптическим характеристикам соответствует одноосному отрицательному монокристаллу BSN. Утверждается, что в ходе напыления пленок BSN на структуру Pt/Si граница раздела BSN–Pt модифицируется.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 15-08-05711 А) и Министерства образования и науки РФ (тема № 213.01-2014/012-ВГ).

## Список литературы

- [1] Вортилов К.А., Мухортов В.М., Сигов А.С. Интегрированные сегнетоэлектрические устройства. М.: Энергоатомиздат, 2011. 175 с.
- [2] Willmott P.R., Herger R., Patterson B.D., Windiks R. // Phys. Rev. B. 2005. V. 71. P. 144 114.
- [3] Мухортов В.М., Головки Ю.И., Бирюков С.В., Анохин А.С., Юзюк Ю.И. // ЖТФ. 2016. Т. 86. В. 1. С. 93–98.
- [4] Толмачев Г.Н., Ковтун А.П., Захарченко И.Н., Алиев И.М., Павленко А.В., Резниченко Л.А., Вербенко И.А. // ФТТ. 2015. Т. 57. В. 10. С. 2050–2055.
- [5] Зинченко С.П., Ковтун А.П., Толмачев Г.Н. // ЖТФ. 2009. Т. 79. В. 11. С. 128–133.
- [6] Алиев И.М., Зинченко С.П., Ковтун А.П., Толмачев Г.Н., Павленко А.В. // ЖТФ. 2015. Т. 85. В. 10. С. 145–147.
- [7] Павленко А.В., Абубакаров А.Г., Резниченко Л.А., Алиев И.М., Шилкина Л.А., Назаренко А.В., Вербенко И.А., Константинов Г.М. // ЖТФ. 2015. Т. 85. В. 8. С. 80–84.

- [8] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Электродинамика сплошных сред. М: Наука, 1982. С. 412–413.
- [9] Rakic A.D., Djurisic A.B., Elazar J.M., Majewski M.L. // Appl. Opt. 1998. V. 37. N 22. P. 5271–5283.
- [10] Kip D., Aulkemeyer S., Buse K., Mersh F., Pankrath R. // Phys. Stat. Sol. (a). 1996. V. 154. P. 5.
- [11] Lenzo P.V., Spencer E.C., Ballman A.A. // Appl. Phys. Lett. 1967. V. 11. P. 23–24.