

УДК 534.28

## ЗАРОЖДЕНИЕ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ В ПЛЕНКЕ СЕГНЕТОЭЛАСТИКА НА МАССИВНОЙ ПОДЛОЖКЕ В ОКРЕСТНОСТИ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА

И. Е. Дижштейн, В. В. Тарасенко

Рассмотрено образование стрикционной сверхструктуры в пленке сегнетоэластика произвольной толщины на массивной подложке в окрестности точки Кюри. Определена зависимость температуры зарождения доменной структуры  $T_K$  и ее периода от толщины пленки. Показано, что в окрестности температуры  $T_K$  в регулярной доменной структуре образуются сингулярные дефекты (дислокации и дисклинации), разрушающие дальний трансляционный порядок в сверхструктуре.

1. Как показал Андреев [1], в двумерной системе на поверхности кристалла стрикционная связь параметра порядка с деформациями решетки приводит к появлению фазы с пространственно-модулированным параметром порядка. В работе одного из авторов [2] была рассмотрена волна Лява в толстой пленке сегнетоэластика (СЭ) ( $L \gg a$ ) на массивной подложке [1] и показано, что при температуре  $T = T_K < T_C$  волна Лява становится неустойчивой и конденсируется в доменную структуру (ДС), локализованную в пленке и подложке вблизи границы раздела. Здесь  $L$  — толщина пленки,  $a$  — параметр решетки,  $T_C$  — температура Кюри массивного СЭ. В обоих случаях образование ДС связано с необходимостью уменьшения энергии дальнедействующих полей упругих напряжений в подложке, проницающих в нее на глубину порядка периода ДС.

Нами исследован фазовый переход (ФП) в пленке произвольной толщины на массивной подложке. Построена фазовая диаграмма на плоскости  $(T, L)$ . Случай двумерного кристалла [1] можно получить из приведенных ниже результатов в пределе  $L \rightarrow 0$ . Рассмотрена возможность образования в регулярной ДС сингулярных дефектов (дислокаций и дисклинаций), разрушающих дальний трансляционный порядок в сверхструктуре.

2. Рассмотрим ФП  $D_{2h} - C_{2h}$  в слое СЭ  $0 \leq y \leq L$  на деформируемой подложке  $y < 0$ , при котором возникают спонтанные сдвиговые деформации  $e_3$ . Интересующая нас часть свободной энергии имеет вид

$$F = \sum_{n=1, 2} \int_{V_n} \left( \frac{1}{2} c_{ij}^{(n)} e_i^{(n)} e_j^{(n)} + 2c_{\gamma\gamma}^{(n)} e_\gamma^{(n)2} \right) dv_n + \int_{V_1} \left[ \frac{1}{2} \alpha \eta^2 + \frac{1}{4} \beta \eta^4 + \frac{1}{2} \delta (\nabla \eta)^2 + d \eta e_3^{(1)} \right] dv_1, \quad (1)$$

где  $c_{ij}^{(n)}$  — упругие модули;  $\alpha, \beta, \delta, d$  — коэффициенты разложения  $F$  по параметру порядка  $\eta$  и  $\hat{e}$ ;  $i, j = 1, 2, 3$ ;  $\gamma = 4, 5, 6$ ; индексами  $n = 1$  и  $2$  отмечены параметры пленки и подложки соответственно;  $V_{1, 2}$  — объем пленки и подложки соответственно;  $\hat{e}$  — тензор деформации. Предполагается,

<sup>1</sup> В [3] предсказывалась сильная дисперсия скорости волны Лява при уменьшении одного из модулей сдвига пленки.

что в окрестности температуры СЭ ФП  $T_K$  коэффициент  $\alpha = \alpha'(T - T_0)$  ( $T_0$  — температура Кюри зажатого образца ( $\hat{\epsilon} = 0$ )), а остальные коэффициенты слабо зависят от  $T$ . Учет упругих ангармонизмов в (1) приводит лишь к перенормировке  $\xi$  в конечных результатах.<sup>2</sup>

В параэластической фазе для волны Лява с горизонтальной поляризацией  $u_x^{(1)}$ , распространяющейся вдоль оси  $z$ , решения уравнений состояния

$$\Gamma \dot{\eta} = -\delta F / \delta \eta, \quad \rho^{(n)} \ddot{u}_i^{(n)} = \nabla_j \sigma_{ij} \quad (2)$$

( $\sigma_{ij}^{(n)} = \delta F / \delta u_i^{(n)}$  — тензор напряжений,  $\rho^{(n)}$  — плотность вещества,  $u^{(n)}$  — вектор смещения,  $\Gamma$  — кинетический коэффициент) с граничными условиями

$$\nabla_y \eta = 0, \quad \sigma_3^{(1)} = 0, \quad \sigma_6^{(1)} = 0, \quad y = L, \quad (3)$$

$$\nabla_y \eta = 0, \quad \sigma_3^{(1)} = \sigma_3^{(2)}, \quad \sigma_6^{(1)} = \sigma_6^{(2)}, \quad u^{(1)} = u^{(2)}, \quad y = 0 \quad (4)$$

можно представить в виде

$$\left. \begin{aligned} u_x^{(1)} &= A [\gamma_1(y) + \gamma_2(y)] \exp[i(kz - \omega t)], \\ \eta &= A [\varphi_1(y) + \varphi_2(y)] \exp[i(kz - \omega t)], \\ u_x^{(2)} &= A [\text{ctg } q_1 L + \gamma \text{cth } q_2 L] \exp[q_3 y + i(kz - \omega t)], \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

$$\gamma_1(y) = \cos q_1(L - y) / \sin q_1 L, \quad \gamma_2(y) = \gamma \text{ch } q_2(L - y) / \text{sh } q_2 L,$$

$$\varphi_{1,2}(y) = -i \frac{d}{2} k [\delta(k^2 \pm q_1^2, 2) + \alpha - i\Gamma\omega]^{-1} \gamma_{1,2}, \quad \gamma = q_1 [\delta(k^2 - q_2^2) + \alpha - i\Gamma\omega] \times$$

$$\times [\delta(k^2 + q_2^2) + \alpha - i\Gamma\omega]^{-1} \tilde{q}_2^{-1}, \quad q_{1,2}^2 = [(Q_{\pm}^2 + \delta^{-1} c_{66}^{(1)} k^2 d^2)^{1/2} \pm Q_{\pm}] / 2c_{66}^{(1)},$$

$$q_3^2 = c_{66}^{(2)-1} (c_{33}^{(2)} k^2 - \rho^{(2)} \omega^2), \quad Q_{\pm} = \rho^{(1)} \omega^2 - c_{66}^{(1)} k^2 \pm \delta^{-1} c_{66}^{(1)} (\alpha + \delta k^2 - i\Gamma\omega).$$

Подставляя (5) в (3), (4), получаем характеристическое уравнение

$$\frac{c_{66}^{(1)}}{c_{66}^{(2)}} \left\{ \frac{q_1}{q_3} - \gamma \left[ \frac{q_2}{q_3} + \frac{c_{66}^{(2)}}{c_{66}^{(1)}} \text{cth } q_2 L \right] \right\} \text{tg } q_1 L - 1 = 0. \quad (6)$$

Для тонких пленок  $a \ll L \ll L_c = (4\delta\mu/d^2)^{1/2}$  выполняются неравенства  $q_{1,2} L \ll 1$  (далее для простоты будем считать пленку и подложку изотропными по упругим свойствам с равными модулями сдвига  $c_{66}^{(2)} = c_{66}^{(1)} = \mu$ ,  $\rho^{(1)} = \rho^{(2)} = \rho$ , причем анизотропия в системе будет определяться связью параметра порядка с деформациями). В этом случае дисперсионное уравнение низкочастотной ветви колебаний при  $k \sim L/(2L_c^2)$  имеет вид

$$\omega^2 = \mu [a(1 - i\zeta'') + \delta k(k - L/L_c^2)] / \{\rho L_c^2 [\delta(k^2 + L_c^{-2}) + \alpha]\}, \quad (7)$$

где  $\zeta'' = \Gamma\omega/\alpha$ . Заметим, что  $d^2/4\mu = \alpha'(T_C - T_0)$ ,  $\delta \approx \xi_0^2 \alpha' T_C$  [4],  $T_C$  — температура Кюри свободного образца,  $\xi_0 \sim a$  — радиус корреляции флуктуаций вдали от температуры СЭ ФП  $T_K$ . Поэтому неравенство  $L_c \gg a$ , определяющее область применимости приближения сплошной среды, может быть выполнено в случае, если параметр порядка слабо связан с деформациями, т. е.  $(T_C - T_0)/T_K \ll 1$ .

Из условий  $\omega^2 = 0$  и  $\nabla_k \omega^2 = 0$  определяем температуру  $T_K$ , при которой параэластическая фаза теряет устойчивость относительно образования ДС, волновой вектор  $k_C$  и период  $L_C$  критической волны Лява

$$T_K = T_0 + \frac{\delta L^2}{4a' L_C^4}, \quad k_C = \frac{2\pi}{D_C} = \frac{L}{2L_C^2}, \quad q_{1,2} = \left( \frac{L}{L_C^2} \right)^{1/2} \left( 1 \mp \frac{3}{8} \frac{L}{L_C} \right), \quad q_3 = k_C. \quad (8)$$

При уменьшении толщины пленки температура  $T_K$  стремится к температуре Кюри зажатого образца  $T_0$ , т. е. пленка зажимается подложкой, а период ДС и глубина проникновения поверхностных решений в подложку растут ( $q_3^{-1} = D_C/2\pi \sim L_C^2/L$ ). Пусть теперь  $L \rightarrow 0$ , а величины  $aL$ ,  $dL$  и  $\delta L$  при  $L \rightarrow 0$  — имеют конечные значения. Тогда формулы (8) будут

<sup>2</sup> Здесь рассматривается случай когерентного сопряжения фаз, т. е. предполагается, что процессы релаксации напряжений на границе пленка—подложка и доменных границах за счет пластической деформации и нарушения сплошности среды происходят достаточно медленно.

определять температуру ФП и период стрикционной (верхней) сверхструктуры с модулированным параметром порядка в двумерной системе на поверхности кристалла, исследованной в [1].

Для толстых пленок  $L \gg L_C$  в области волновых векторов  $kL \gg 1$  дисперсионное уравнение низкочастотной волны Лява принимает вид

$$\omega^2 = \mu [(k^2 L_C^2 + \zeta' - i\zeta'') k^2 + \pi^2 / 4L^2] / \rho, \quad (9)$$

где  $\zeta' = (\alpha - d^2 / 4\mu) / \alpha = (T - T_C) / (T_C - T_0)$ . Из условий  $\omega^2 = 0$ ,  $\nabla_k \omega^2 = 0$  определяем  $T_K$  и  $k_C$

$$T_K = T_C - \pi \delta / (\alpha' L L_C), \quad k_C = \frac{2\pi}{D_C} = \left( \frac{\pi}{2L L_C} \right)^{1/2}. \quad (10)$$

При увеличении толщины пленки  $T_K \rightarrow T_C$ , т. е. пленка почти свободна, а период ДС растет ( $D_C \sim (L L_C)^{1/2}$  [2]).

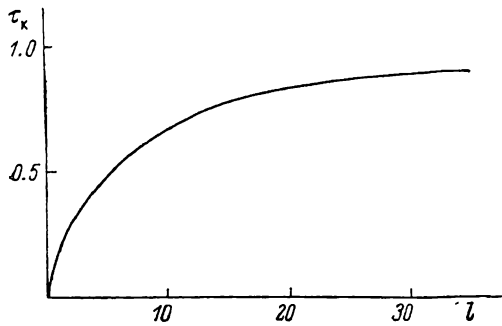


Рис. 1. Зависимость приведенной температуры зарождения ДС  $\tau_K = (T_K - T_0) / (T_C - T_0)$  от приведенной толщины пленки  $l = L / L_C$ .

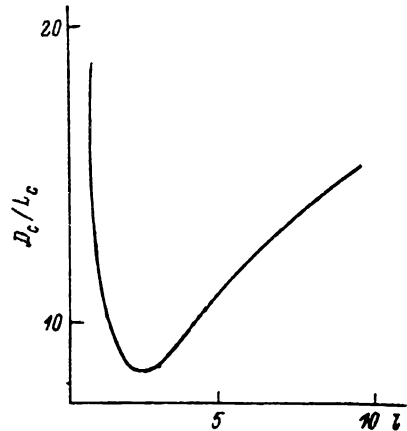


Рис. 2. Зависимость величины  $D_C L_C^{-1}$  от приведенной толщины пленки  $l = L / L_C$ .

Фазовая диаграмма исследуемой системы на плоскости  $(l, \tau_K)$ , где  $l = L / L_C$  — приведенная толщина пленки,  $\tau_K = (T_K - T_C) / (T_C - T_0)$  — приведенная температура, представлена на рис. 1, а зависимость  $D_C L_C^{-1}(l)$  на рис. 2.

Используя (7) и (9), получаем закон дисперсии низкочастотной волны Лява при  $k \sim k_C$ ,  $T \sim T_K$  в следующем виде. Для тонких пленок ( $L \ll L_C$ )

$$\left. \begin{aligned} \omega &= (\mu / \delta \rho)^{1/2} [\alpha' (T - T_K) + \delta (k - k_C)^2]^{1/2} - i\mu \Gamma / 2\rho \delta, & T - T_K \gg \frac{\mu \Gamma^2}{\alpha' \delta \rho} \equiv T_1 \\ \omega &= -i [\alpha' (T - T_K) + \delta (k - k_C)^2] / \Gamma, & T - T_K \ll T_1. \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Для толстых пленок ( $L \gg L_C$ )

$$\left. \begin{aligned} \omega &= \left( \frac{\mu k_C^2}{\rho} \right)^{1/2} \left[ \frac{T - T_K}{T_C - T_0} + 4(k - k_C)^2 L_C^2 \right]^{1/2} - \frac{i\mu k_C^2}{2\rho} \frac{\Gamma}{\alpha}, \\ & T - T_K \gg T_1 \frac{T_C - T_K}{T_C - T_0} \equiv T_2, \\ \omega &= -i\alpha [(T - T_K) / (T_C - T_0) + 4(k - k_C)^2 L_C^2] / \Gamma, & T - T_K \ll T_2. \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

В окрестности ФП ( $T - T_K \ll T_1$ ) спектр волны Лява носит релаксационный характер.

При  $\beta > 0$  в системе происходит ФП 2-го рода. Как показано в [2], статистические распределения  $\eta(\mathbf{r})$  и  $u_x(\mathbf{r})$  в зарождающейся при  $T < T_K$  ДС близки к соответствующим распределениям (5) в критической моде

$$u_x^{(1)} = A (\gamma_1 + \gamma_2) \cos k_C z, \quad \eta = iA \operatorname{Im} (\varphi_1 + \varphi_2) \sin k_C z,$$

$$u_x^{(2)} = A (\operatorname{ctg} q_1 L + \gamma \operatorname{cth} q_2 L) e^{q_2 y} \sin k_C z,$$

причем амплитуда  $A$  при  $L \gg L_C$  равна

$$A = [32\alpha^2 (T_K - T)/9\mu\beta (T_C - T_K)]^{1/2} L. \quad (13)$$

Можно показать, что и при  $L \ll L_C$  распределения  $\eta(\mathbf{r})$  и  $u_x(\mathbf{r})$  описываются формулами (5) с  $A \sim (T_K - T)^{1/2}/(T_K - T_0)^{1/2}$ . Область применимости полученных результатов определяется неравенством  $A \ll 1$ .

3. Оценим влияние флуктуаций на полученные выше результаты. Рассмотрим флуктуации в параэластической фазе при  $L \gg L_C$ . Подставляя выражения (5) в (1), получаем функционал  $F\{A\}$  в форме

$$F\{A\} = \sum_m \sum_{\mathbf{k}_\perp} \Omega_{m\mathbf{k}_\perp}^2 |A_{m\mathbf{k}_\perp}|^2 V_1, \quad (14)$$

где  $m = 1, 2, 3 \dots$  — номер моды;  $\mathbf{k}_\perp = \{k_x, k_y\}$ ,  $\Omega_{m\mathbf{k}_\perp}^2 = \rho\omega_{m\mathbf{k}_\perp}^2/4 \sin^2 q_1 L$ ,

$$\omega_{m\mathbf{k}_\perp}^2 = \rho^{-1}\mu k_C^2 [(T - T_K)/(T_0 - T_C) + m^2 - 1 + 4(k_x - k_C)^2 L_C^2 + gk_x^2 L_C^2]. \quad (15)$$

Последний член в правой части (15) описывает вклад поверхностных флуктуаций с  $\mathbf{k}_\perp \parallel \mathbf{z}$ , которые не являются ни чисто лавовскими, ни чисто рэлеевскими [5]; коэффициент  $g$  определяет изгибную жесткость доменных границ в ДС. В (15) не учтен вклад объемных флуктуаций, не имеющих особенностей вблизи ФП.

Согласно термодинамической теории флуктуаций [6],

$$\langle |A_{m\mathbf{k}_\perp}|^2 \rangle = T/(2V\Omega_{m\mathbf{k}_\perp}^2).$$

Сингулярный вклад в свободную энергию дает мягкая оптическая мода с  $m=1$ , радиус корреляции которой  $r_1 = \tau^{-1/2} L_C \{2; \sqrt{g}\}$  стремится к бесконечности при  $T \rightarrow T_K$ . Регулярную флуктуационную поправку к  $F$  можно не учитывать, если  $r_1 \gg r_m$ , где  $r_m$  — радиус корреляции «регулярных» флуктуаций,  $m > 1$ . Эти неравенства выполняются при условии  $\tau \equiv (T - T_K)/(T_C - T_0) \ll 1$ . Поэтому в области температур  $\tau \ll 1$  исследуемую систему можно рассматривать как квазидвумерную.

В доменной фазе спектр поверхностных мод носит зонный характер [2]. Сингулярный вклад в свободную энергию  $F$  дают мягкая оптическая мода

$$\omega_1^2 = \rho^{-1}\mu k_C^2 [2(T - T_K)/(T_0 - T_C) + 4L_C^2 Q_x^2 + gL_C^2 Q_x^2],$$

радиус корреляции которой стремится к бесконечности при приближении к ФП, и акустическая мода

$$\omega_2^2 = \rho^{-1}\mu k_C^2 L_C^2 (4Q_y^2 + gQ_x^2), \quad (Q = k_\perp - k_C \mathbf{e}_x, \quad |Q| \ll k_C),$$

разрушающая трансляционный порядок в ДС. Анализ вклада в  $F$  флуктуаций 1-го типа показывает, что и в этом случае область двумерности определяется из условия  $|\tau| \ll 1$ . Флуктуации акустического типа разрушают дальний трансляционный порядок в регулярной ДС с образованием фаз Березинского [7-9], которые по мере приближения к температуре ФП становятся все более неупорядоченными. Оценим, например, температуру перехода из фазы, которая помимо статических флуктуаций сверхрешетки типа фононов характеризуется наличием дефектов сверхрешетки типа дислокационных диполей, в фазу-аналог жидкого кристалла, в которой дислокации сверхрешетки становятся свободными. Для этого перейдем к новой системе переменных  $U(x, z)$ , описывающих смещение точки с заданным значением  $u_x$  и  $\eta$  от ее положения в регулярной ДС, т. е. распределение  $u_x(\mathbf{r})$  и  $\eta(\mathbf{r})$  представим в виде

$$u_x^{(1)} \approx A \gamma_1 \cos k_C (z + U), \quad \eta \approx iA \operatorname{Im} \varphi_1 \sin k_C (z + U), \\ u_x^{(2)} \approx A \operatorname{ctg} q_1 L \cos k_C (z + U) \exp(q_2 y),$$

где  $A$  — амплитуда смещения в регулярной ДС (13). Тогда флуктуационную часть свободной энергии запишем в виде

$$F = \frac{1}{2} \int dx dz [c_x (\nabla_x U)^2 + c_z (\nabla_z U)^2],$$

где  $U$  — смещение, нормальное к плоскости доменной границы;  $c = \frac{1}{4} \mu k_C^4 L L_C^2 A^2 \{g, 4\}$  — эффективная константа жесткости ДС, величина которой уменьшается при приближении к ФП. Потребовав, чтобы увеличение энергии при образовании единичной дислокации в ДС  $\delta U = \frac{\sqrt{c_x c_y} B^2}{4\pi} \ln \frac{R}{r_0}$  ( $R$  — радиус-вектор в плоскости пленки,  $r_0 \sim D_C$  — размер ядра дислокации,  $B \sim D_C$  — вектор Бюргерса) компенсировалось энтропийным вкладом  $T \ln (R^2/r_0^2)$ , получаем критерий диссоциации дислокационных диполей

$$\sqrt{c_x c_y} B^2 = 8\pi T,$$

откуда вычисляем температуру перехода

$$T_d = T_K - \frac{9T_K}{16\pi^2 g^{1/2}} \frac{\beta}{a^2 L_C^3} (T_C - T_K)$$

в фазу, в которой дислокации ДС свободны.

Корреляционная функция флуктуаций сверхрешетки (без учета влияния дислокационных диполей) при  $T < T_d$  спадает на больших расстояниях по степенному закону

$$G(\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp) = \langle u_x(\mathbf{r}_\perp) u_x(\mathbf{r}'_\perp) \rangle \sim |\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp|^{-2\pi T / (\sqrt{c_x c_y} B^2)}, \quad (\mathbf{r}_\perp = \{r_x; r_y\}).$$

При  $T > T_d$  корреляции спадают экспоненциально

$$G(\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp) \sim \exp(-|\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp|/D), \quad (D \sim \exp[\text{const}(T_d - T)^{-1/2}]).$$

Следуя [8], можно определить также температуру перехода в фазу, в которой свободными являются дисклинации в ДС.

#### Л и т е р а т у р а

- [1] Андреев А. Ф. Письма в ЖЭТФ, 1980, т. 32, № 11, с. 654—656.
- [2] Дикштейн И. Е. ФТТ, 1986, т. 28, № 6, с. 1748—1752.
- [3] Сыркин Е. С., Гельфгат И. М. Поверхность, 1982, т. 1, № 8, с. 28—29; АЖ, 1983, т. 29, с. 19—22.
- [4] Струков Б. А., Леванюк А. П. Физические основы сегнетоэлектрических явлений в кристаллах. М.: Наука, 1983. 250 с.
- [5] Викторов Н. А. Звуковые поверхностные волны в твердых телах. М.: Наука, 1981. 234 с.
- [6] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Статистическая физика, ч. I. М.: Наука, 1976. с. 454.
- [7] Березинский В. Л. ЖЭТФ, 1970, т. 59, № 3 (9), с. 907—920.
- [8] Nelson D. R., Halperin V. I. Phys. Rev., 1979, vol. 19B, № 3, p. 2457—2484.
- [9] Паташинский А. З., Покровский В. Л. Флуктуационная теория фазовых переходов. М.: Наука, 1982, с. 259.

Институт радиотехники и электроники АН СССР  
Москва

Поступило в Редакцию  
23 июля 1987 г.