

05:06;12

Индукцированные состояния сегнетоэлектрика с одинаковой диэлектрической проницаемостью

© А.М. Прудан, А.Б. Козырев, А.В. Земцов

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет „ЛЭТИ“,
197376 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: f@eltech.ru

(Поступило в Редакцию 11 августа 2003 г.)

Проведено исследование условий формирования электрическим полем состояний сегнетоэлектрика, которые соответствуют разным температурам параэлектрической области, но неразличимы по диэлектрической проницаемости. Получены данные о температурной зависимости напряженности управляющего поля, индуцирующего такие состояния, и о ширине интервала ($\epsilon_{\min} \dots \epsilon_{\max}$) реализуемых значений диэлектрической проницаемости. Проанализирован эффект пересечения $\epsilon(E, T_i)$ -характеристик сегнетоэлектрика, находящегося в параэлектрическом состоянии. Показано, что согласование управляющего поля с температурой обеспечивает постоянство заданного значения проницаемости (ϵ_i) пленочных образцов титаната стронция и твердого раствора титанат бария–титанат стронция в широком (200...320 К) температурном диапазоне при сохранении возможности более чем двукратного изменения ее величины (ϵ_i) электрическим полем.

Введение

Использование сегнетоэлектрических (СЭ) материалов в составе структуры металл–диэлектрик–металл позволяет реализовать устройства радиоэлектроники с электрически управляемыми характеристиками [1]. Температурная зависимость диэлектрической проницаемости $\epsilon(T)$ и диэлектрическая нелинейность $\epsilon(E)$ сегнетоэлектриков неразрывно сосуществуют: $\epsilon(E, T)$. С точки зрения практических приложений чувствительность проницаемости ($\epsilon(T)$) и соответственно характеристик прибора к температуре является негативным фактором. Очевидный способ его устранения — это стабилизация температуры СЭ элемента или устройства в целом. Включение термостата в состав радиоэлектронной системы снижает в ряде случаев ее эксплуатационные характеристики. Для практических приложений необходимы менее затратные способы получения температуростабильных характеристик элементов на основе сегнетоэлектрических материалов.

Известно, что при отсутствии внешнего электрического воздействия каждому параэлектрическому состоянию сегнетоэлектрика соответствует индивидуальное значение диэлектрической проницаемости $\epsilon(T)$. Присутствие электрического поля может изменить эту ситуацию. Так, при выполнении условия неизменности поляризации ($P_i(T) = \text{const}$) сохраняется различимость всех состояний по ϵ , а при неизменности напряженности управляющего поля ($E_i(T) = \text{const}$) зависимость проницаемости от температуры ($\epsilon(E_i, T)$) в области парафазы становится немонотонной. Возникают пары состояний с одинаковым значением проницаемости $\epsilon(E_i, T_k) = \epsilon(E_i, T_l)$. Кроме того, возможен вариант электрического воздействия, который обеспечивает постоянство проницаемости ($\epsilon_i(T) = \text{const}$) в широком температурном диапазоне [2]. В работе проанализирована задача согласования

температуры материала и характеристик поля управления, необходимого для реализации состояний сегнетоэлектрика, отличающихся температурой, но неразличимых по диэлектрической проницаемости.

Индукцированные состояния сегнетоэлектрика

Для описания диэлектрических свойств СЭ с фазовым переходом второго рода используем формализм Гинзбурга–Девоншира. В таком приближении обратная проницаемость ($\alpha = 1/\epsilon_0\epsilon$) сегнетоэлектрика в параэлектрическом состоянии является функцией двух независимых аргументов: поляризации (P) и температуры (T)

$$\alpha(P, T) = \alpha_0(0, T) + 3\beta P^2, \quad (1)$$

где $\alpha_0(0, T)$ — обратная проницаемость при отсутствии управляющего поля, зависящая от температуры; β — константа диэлектрической нелинейности первого порядка ($\beta = \text{const}(T)$).

Искусственно поддерживаемая зависимость $P(T)$ вида

$$P^2(T) = P_1^2 - P_2^2(T), \quad (2)$$

в которой P_1 — постоянная и

$$P_2(T) = (3\beta\epsilon_0\epsilon(0, T))^{-0.5} \quad (3)$$

— изменяющаяся с температурой составляющая поляризации, обеспечивает и управление проницаемостью $\epsilon_i(P_1)$ и компенсацию ($d\epsilon_i/dT = 0$) ее температурных изменений. Отметим, что зависимость (2), созданная методом пошагового приращения поляризации при неизменной температуре (ΔP_T) и температуры при неизменной поляризации (ΔT_P), соответствует условию применимости соотношения (1). Инвариантная формулировка

для электрического воздействия, которое индуцирует неразличимые по диэлектрической проницаемости состояния, имеет вид

$$E^2(T) = E_1^2 + \frac{3}{2} \sqrt{2E_1^4 E_2^2(T) - E_2^2(T)}, \quad (4)$$

где

$$E_1 = (27\beta\epsilon_0^3\epsilon_i^3)^{-0.5}, \quad (5)$$

$$E_2(T) = 2(27\beta\epsilon_0^3\epsilon^3(0, T))^{-0.5} \quad (6)$$

— компоненты напряженности электрического поля, обеспечивающие соответственно и вариацию проницаемости $\epsilon_i(E_1)$ и постоянство ее значения ($\epsilon_i(T) = \text{const}$) в заданном интервале температур; ϵ_0 — диэлектрическая постоянная.

Таким образом, отсутствуют ограничения принципиального характера на возможность стабилизации проницаемости СЭ в заданном интервале температур, а существующие технические средства позволяют реализовать необходимые для этого алгоритмы согласования (1), (4) управляющего поля с температурой.

Влияние ширины интервала температур ($T_l \dots T_k$) на диапазон реализуемых значений проницаемости ($\epsilon_i = \epsilon_{\text{max}} \dots \epsilon_{\text{min}}$) и на величину необходимых при этом напряженностей поля управления ($E_{\text{min}} \dots E_{\text{max}}$) занимает ключевое положение в обсуждаемом способе температурной стабилизации диэлектрических свойств сегнетоэлектрика. Поиск корреляции между $\Delta\epsilon_i$ и ΔT и между ΔE и ΔT заметно упрощается при использовании закономерности пересечения $\epsilon(E, T_i)$ -характеристик, соответствующих двум разным температурам ($T_l < T_k$). Отметим, что опубликованные ранее [3,4] экспериментальные данные обнаруживали такую ($\epsilon(E_C, T_l) = \epsilon(E_C, T_k)$) особенность нелинейных свойств сегнетоэлектриков, которая была не отмечена и не обоснована аналитически.

Пересечение $\epsilon(E)$ -характеристик

При отсутствии управляющего поля ($E = 0$) диэлектрическая проницаемость ($\epsilon(0, T)$) сегнетоэлектрика с фазовым переходом второго рода монотонно убывает с ростом температуры, соответствующей параэлектрической области ($T > T_C$). Воздействие электрического поля ($E_i = \text{const}$) вызывает ее уменьшение ($\epsilon(0, T) > \epsilon(E_i, T)$) и сопровождается появлением в области $T > T_C$ максимума на зависимости $\epsilon(E_i, T)$ [3–5]. В этом случае возникают пары состояний, которые не различаются по проницаемости. Присутствие на температурной зависимости ($\epsilon(E_i, T)$) одинаковых значений $\epsilon(E_i, T_l) = \epsilon(E_i, T_k)$ свидетельствует о том, что полевые характеристики $\epsilon(E, T_l)$ и $\epsilon(E, T_k)$, соответствующие температурам T_l и $T_k > T_l$ должны пересекаться.

Такой вывод следует из феноменологической теории сегнетоэлектричества. Используем ряд Гинзбурга–Девоншира, ограниченный слагаемым с четвертой степенью поляризации. Стандартные процедуры дифференцирования ряда приводят к системе алгебраических

уравнений, связывающих напряженность электрического поля (E) и обратную проницаемость ($\alpha = 1/\epsilon_0\epsilon(E, T)$) с модулем вектора поляризации (P) сегнетоэлектрика, находящегося в параэлектрическом состоянии,

$$\begin{cases} E = (\alpha_0 + \beta P^2)P, \\ \alpha = \alpha_0 + 3\beta P^2. \end{cases} \quad (7)$$

Система, составленная из уравнений (7), соответствующих двум температурам $T = T_k$ и $T = T_l < T_k$, имеет положительное решение относительно проницаемости $\epsilon(E_C, T_l) = \epsilon(E_C, T_k) = \epsilon_C$

$$\frac{1}{\epsilon_C^2} = \frac{4}{3} \left(\frac{1}{\epsilon^2(0, T_l)} + \frac{1}{\epsilon(0, T_l)\epsilon(0, T_k)} + \frac{1}{\epsilon^2(0, T_k)} \right) \quad (8)$$

и напряженности поля (E_C)

$$(27\beta(\epsilon_0\epsilon(0, T_k))^3)E_C^2 = \left(\frac{\epsilon(0, T_k)}{\epsilon_C} \right)^3 + 3 \left(\frac{\epsilon(0, T_k)}{\epsilon_C} \right)^2 - 4, \quad (9)$$

которые определяют положение точки пересечения графиков $\epsilon(E, T_l)$ и $\epsilon(E, T_k)$. В качестве примера, иллюстрирующего обсуждаемую особенность, на рис. 1 представлены расчетные зависимости $\epsilon(E, T_i)$ для титаната стронция ($T_C = 40$ К, $C_K = 9 \cdot 10^4$ К, $\beta = 8.9 \cdot 10^9$ м⁵/С²Ф [3–5]).

Экспериментальные исследования плоскопараллельных МДМ структур на основе объемных сегнетоэлектриков [4] и планарных конденсаторов на пленках SrTiO₃ ($T_C = 40$ К, рис. 1) и пленках (Ba_xSr_{1-x})TiO₃ ($T_C = 120$ К, рис. 2), полученных методом ВЧ магнетронного распыления [6,7], обнаруживают попарное пересечение вольт-фарадных характеристик ($C(U, T_i)$). Необходимо отметить, что междуэлектродное пространство планарного конденсатора имеет неоднородное диэлектрическое заполнение, а зависимость его емкости

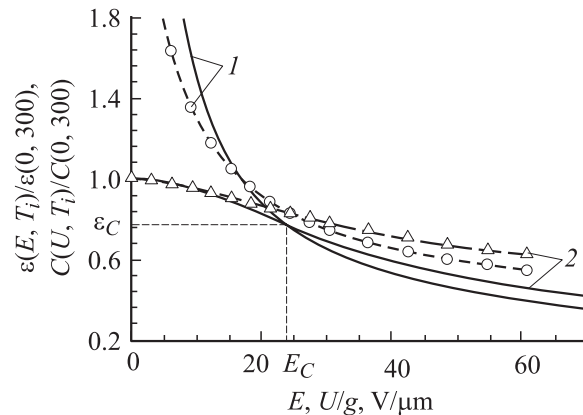


Рис. 1. Полевые зависимости диэлектрической проницаемости титаната стронция (сплошные кривые, расчет) и емкости планарного конденсатора на пленке SrTiO₃ (экспериментальные данные; значки) при двух температурах: 1 — $T = 78$, 2 — 300 К. U/g — управляющее напряжение (U) на единицу ширины зазора (g) между электродами конденсатора.

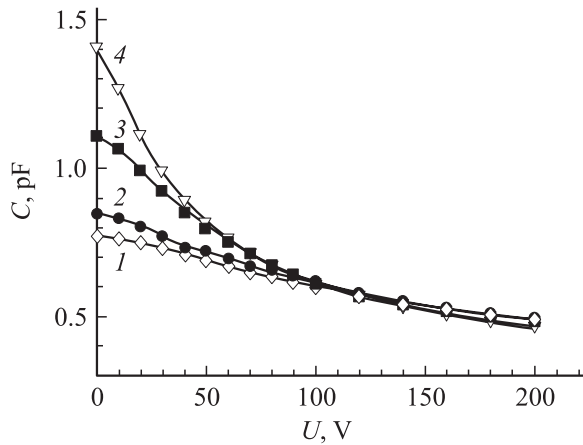


Рис. 2. Вольт-фарадные характеристики планарного конденсатора на пленке $(\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7})\text{TiO}_3$ ($T_C = 120$ К) при разных температурах: 1 — $T = 325$, 2 — 305, 3 — 225, 4 — 200 К. Частота измерительного поля $f = 1$ МГц.

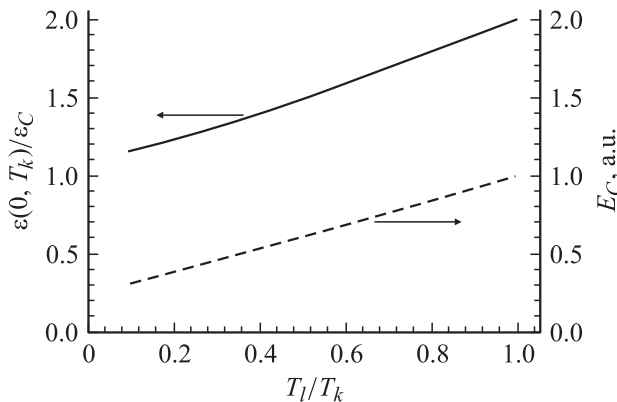


Рис. 3. Зависимость координат (ϵ_c, E_c) точки пересечения двух $(\epsilon-E)$ характеристик титаната стронция от отношения температур (T_l/T_k) , которым они соответствуют.

от диэлектрической проницаемости сегнетоэлектрика отличается от линейной функции [8]. По этой причине в точке пересечения двух вольт-фарадных характеристик (ВФХ) равенство проницаемостей СЭ строго не выполняется

$$\epsilon(E_C, T_l)/\epsilon(E_C, T_k) = 1 \pm \Delta.$$

Для исследованных планарных структур поправочный параметр Δ обладает свойством малости ($\Delta \ll 1$) и точка на ВФХ с координатами $\{C_C, U_C\}$ соответствует (рис. 1) выполнению равенства $\epsilon(E_C, T_l) = \epsilon(E_C, T_k)$.

Отношение температур T_l/T_k оказывает определяющее влияние на координаты этой точки (рис. 3). Из соотношения (8) следует, что при $T_l/T_k = 1$ проницаемость ϵ_C имеет минимальное ($\epsilon_C = 0.5\epsilon(0, T_k)$) значение. Увеличение различия между T_k и T_l сопровождается ростом проницаемости ϵ_C , которая в предельном случае ($T_l = T_C$) принимает максимальное значение $\epsilon_C = 0.87\epsilon(0, T_k)$.

Другая координата — напряженность поля E_C (9) увеличивается с ростом отношения T_l/T_k (рис. 3), принимая максимальное $(E_C)_{\max}$ значение при $T_l/T_k = 1$

$$(E_C)_{\max} = \frac{4}{3} \left(3\beta(\epsilon_0\epsilon(0, T_k))^3 \right)^{-1/2}. \quad (10)$$

Отметим также, что при воздействии слабого ($E_i < (E_C)_{\max}$) управляющего поля производная $\partial(\epsilon(E_i, T))/\partial T$ имеет отрицательное значение. Переход в область сильных ($E_i > (E_C)_{\max}$) полей сопровождается изменением знака этой производной. В этом случае в пределах каждой $\epsilon(E, T_i)$ -характеристики, соответствующей любой температуре из интервала $T_l \in T_l \dots T_k$, присутствует одинаковый диапазон $(\epsilon_{\max} \dots \epsilon_{\min})$ реализуемых значений диэлектрической проницаемости.

Анализ показывает, что полевая зависимость $\epsilon(E, T_k)$, соответствующая максимальной температуре $T = T_k$, содержит полную информацию о границах диапазона $(\epsilon_{\max}$ и $\epsilon_{\min})$ стабилизируемых значений проницаемости $\epsilon_{\max} = \epsilon(0, T_k)$, $\epsilon_{\min} = (\epsilon(E_{\max}, T_k))$, где E_{\max} — максимальная напряженность поля управления при температуре $T = T_k$. Для исключения произвольности выбора значения E_{\max} отождествим ее с максимальной напряженностью поля $(E_C)_{\max}$ (10). Отметим, что величина $(E_C)_{\max}$ является физическим параметром сегнетоэлектрика, так как в ее определение входят только константы материала. Существенно и то, что воздействие поля с такой напряженностью вызывает двукратное изменение диэлектрической проницаемости $(\epsilon(0, T_k) = 2(\epsilon((E_C)_{\max}, T_k)))$, достаточное для практических приложений.

Обсуждение результатов

Экспериментальные данные о температурном поведении напряженности управляющего поля, воздействие которого обеспечивает постоянство $(\epsilon_i(T) = \text{const})$ диэлектрической проницаемости SrTiO_3 , представлены на

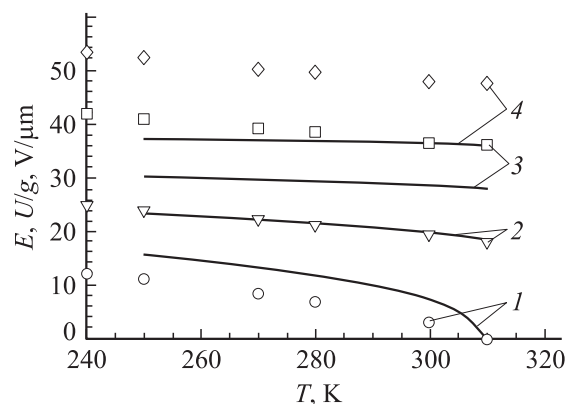


Рис. 4. Температурное поведение напряженности управляющего поля в титанате стронция, при котором сохраняется неизменность значений диэлектрической проницаемости (ϵ_i) объемного образца (сплошные кривые, расчет) и емкости (C_i) планарного конденсатора на пленке SrTiO_3 (значки, эксперимент). 1 — $C_i/C(0, 310)$, $\epsilon_i/\epsilon(0, 310) = 1.00$; 2 — 0.83; 3 — 0.71; 4 — 0.62.

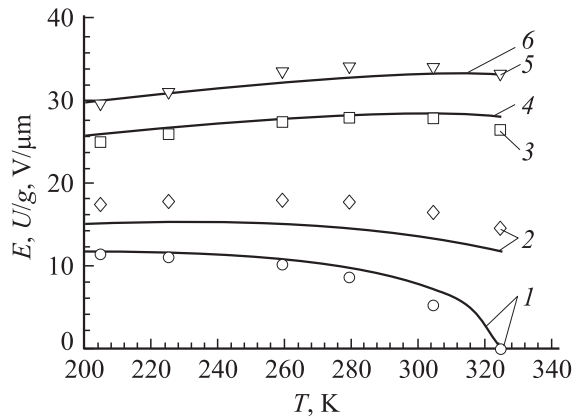


Рис. 5. Температурное поведение напряженности управляющего поля в твердом растворе титанат бария–титанат стронция, при котором сохраняется неизменность значений диэлектрической проницаемости (ϵ_i) объемного образца (сплошные кривые, расчет) и емкости (C_i) планарного конденсатора на пленке $(\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7})\text{TiO}_3$ (значки, эксперимент). 1 — $C_i/C(0, 310)$, $\epsilon_i/\epsilon(0, 310) = 1.00$; 2 — 0.83; 3 — 0.71; 4 — 0.55, 5 — 0.66; 6 — 0.50.

рис. 4. Даже при существенной удаленности значимого для практических приложений интервала температур (220...320 К) относительно температуры Кюри ($T_C = 40$ К) напряженности управляющего поля в несколько раз меньше критического ($E_{cr} \sim 200 \text{ V}/\mu$ [9]) значения для сегнетоэлектрических пленок. Наблюдаемое на рис. 4 несовпадение результатов расчета и эксперимента, по-видимому, связано с неоднородностью диэлектрической проницаемости сегнетоэлектрической пленки планарного конденсатора.

Компонента напряженности поля $E_2(T)$ (6), которая компенсирует температурную зависимость диэлектрической проницаемости, возрастает с ростом температуры: $E_2 \sim (T - T_C)^{3/2}$. Уменьшение приведенной температуры $(T - T_C)$ за счет использования сегнетоэлектрического материала с большим значением параметра T_C функции Кюри позволяет заметно снизить и компоненту E_2 и результирующую напряженность (4) поля управления. Экспериментальные данные (рис. 5), полученные при исследовании планарных конденсаторов на пленке твердого раствора $(\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7})\text{TiO}_3$ ($T_C = 120$ К), подтверждают этот прогноз.

В заключение отметим, что присутствие в сегнетоэлектрике управляющего электрического поля, характеристики которого согласованно меняются с температурой, индуцирует состояния, отличающиеся температурой, но неразличимые по диэлектрической проницаемости. Такое воздействие обеспечивает температурную независимость значения (ϵ_i) диэлектрической проницаемости сегнетоэлектрика и изменение ее величины электрическим полем в диапазоне от $\epsilon_i = \epsilon_{\min}$ до $\epsilon_i = \epsilon_{\max}$, достаточном ($\epsilon_{\max}/\epsilon_{\min} \sim 2$) для технических приложений.

Список литературы

- [1] Vendik O.G., Golman E.K., Kozыrev A.B. et al. // J. Superconductivity. 1999. Vol. 12. N 2. P. 325–338.
- [2] Прудан А.М. Автореферат. Многослойные структуры на эффекте сильного поля в сегнетоэлектрических пленках. СПб., 2002. 32 с.
- [3] Белокопытов Г.В., Бузин И.М., Иванов И.В. и др. // ФТТ. 1981. Т. 23. Вып. 1. С. 141–146.
- [4] Dec J., Kleemann W., Westwanski B. // J. Phys. 1999. Vol. 11. P. L379–L383.
- [5] Worlock J.M., Fleury P.A. // Phys. Rev. Lett. 1967. Vol. 19. N 20. P.1176–1181.
- [6] Гольман Е.К., Логинов В.Е., Прудан А.М. и др. // Письма в ЖТФ. 1995. Т. 21. Вып. 21. С. 84–88.
- [7] Гольман Е.К., Гольдрин В.И., Логинов В.Е. и др. // Письма в ЖТФ. 1999. Т. 25. Вып. 14. С. 1–5.
- [8] Вендик О.Г., Зубко С.П., Никольский М.А. // ЖТФ. 1999. Т. 69. Вып. 4. С. 1–9.
- [9] Dougherty K., Drab J., Brand M. et al. // Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 2002. Vol. 720. P. H2.3.1.