

05

## Селективный разогрев мягкой моды в сегнетоэлектрической пленке

© А.М. Прудан, А.В. Мезенов, С.А. Ктиторов

Санкт-Петербургский электротехнический университет (ЛЭТИ)  
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург  
E-mail: AMPrudan@mail.eltech.ru

Поступило в Редакцию 3 ноября 2006 г.

Представлены результаты исследования влияния электромагнитного излучения с частотой  $f \sim 0.3$  THz на температуру подсистемы фононов мягкой моды в пленке  $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$ . Особенности температурных режимов в сегнетоэлектрическом конденсаторе были выявлены с помощью емкостного термометра и термопары. Обнаружено что при интенсивности накачки ( $\sim 6 \text{ mW/mm}^2$ ) перегрев фононов мягкой моды, оцениваемый по изменению емкости планарного конденсатора, превышает интегральный перегрев конденсатора, обнаруженный с помощью термопары. Проанализированы условия для неравновесного состояния подсистемы фононов мягкой моды в сегнетоэлектрической пленке.

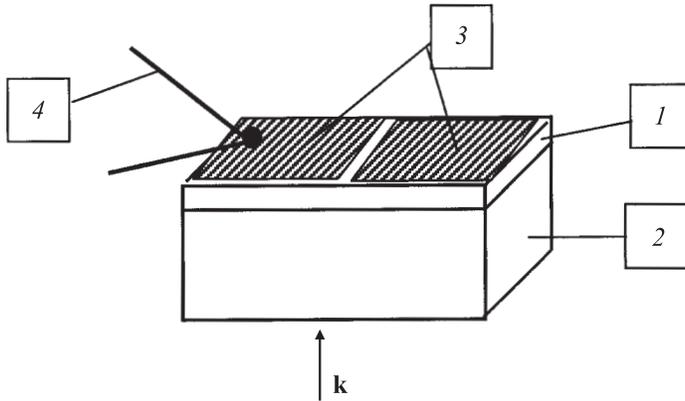
PACS: 77.80.-e

Аномальные диэлектрические свойства сегнетоэлектриков типа смещения обусловлены присутствием в веществе мягкой моды. Термодинамически равновесное тепловое, электрическое или механическое воздействие изменяет за счет ангармонизма дисперсионную характеристику  $\omega(k)$  для такого типа оптических колебаний кристаллической решетки и соответственно изменяет величину диэлектрической проницаемости. Возбуждение в материале избыточных фононов мягкой моды также способно вызвать возмущение дисперсионной характеристики. Отметим, что в литературе обсуждался аналогичный способ стимуляции фазового перехода в сверхпроводнике за счет нарушения условия термодинамического равновесия в электронной подсистеме [1].

Исследования сегнетоэлектриков со структурой перовскита методами ИК и рамановской спектроскопии позволили конкретизировать частоту и время затухания мягкой моды, а также выявили чувствительность этих параметров к структурным несовершенствам материала.

ла [2–6]. Частоты дисперсии диэлектрической проницаемости и соответственно мягкой моды в пленках титаната стронция, измеренные при комнатной температуре, лежат в широком (0.4 . . . 0.7 THz) интервале. В этом же диапазоне находятся и дисперсионные частоты, полученные при  $T_0 = 300$  К для пленок твердого раствора  $(\text{Ba}_x, \text{Sr}_{1-x})\text{TiO}_3$  [5]. Время затухания ( $\tau_0$ ) и обратная частота ( $\omega_0^{-1}$ ) мягкой моды сегнетоэлектриков кислородно-октаэдрического типа, измеренные методом ИК-спектроскопии, совпадают по порядку величины ( $\tau_0\omega_0 \sim 1$ ). Вблизи фазового перехода их произведение удовлетворяет неравенству  $\tau_0\omega_0 < 1$ , свидетельствующему о передемпфированности моды. При удалении от критической температуры происходит изменение знака неравенства, означающее переход мягкой моды в недодемпфированное состояние. Следует отметить, что пленочные образцы по сравнению с монокристаллом имеют более широкий интервал температур, в пределах которого мода обладает свойством передемпфированности [4]. Теория предсказывает, что в монокристаллах при приближении к точке сегнетоэлектрического перехода  $\omega_0^2$  стремится к нулю как  $(T - T_c)$ , в то время как температурное поведение времени затухания имеет более сложную форму:  $\tau_0(T)^{-1}aT/(\omega_0) + b[T/(\omega_0)]^2$ , где  $a$  и  $b$  — параметры материала [7].

В работе представлены результаты исследования влияния электромагнитного поля миллиметрового диапазона на состояние мягкой моды в пленке твердого раствора  $(\text{Ba}_{0.4}, \text{Sr}_{0.6})\text{TiO}_3$ , нанесенной на диэлектрическую подложку. Граница раздела пленка–подложка в такой структуре является прозрачной для акустических фононов и отражающей для фононов мягкой моды. Отсутствие „партнера“ мягкой моды в подложке напоминает ситуацию так называемого андреевского отражения. Учет ангармонизма открывает канал распада фонона мягкой моды на пару акустических, что делает обмен энергией между подсистемами вблизи границы более эффективным. При наличии теплового контакта подложки с окружающей средой она исполняет роль термостата, теплоемкость ( $C$ ) которого существенно превышает теплоемкость подсистемы фононов мягкой моды ( $C_s$ ). Несоизмеримость теплоемкостей ( $C_s \ll C$ ) обеспечивает необходимую предпосылку для перегрева мягкой моды полем накачки при незначительном увеличении энергии других колебательных мод в сегнетоэлектрической пленке. Анализ простейшей гидродинамической модели показывает, что разогрев мягкой моды



**Рис. 1.** Многослойная структура для исследования эффекта селективного разогрева мягкой моды: 1 — сегнетоэлектрическая пленка; 2 — диэлектрическая подложка; 3 — электроды планарного конденсатора; 4 — термопара;  $\mathbf{k}$  — волновой вектор электромагнитной накачки.

возможен при выполнении условия:

$$\frac{C_f}{C_s} \frac{\tau_s}{\tau_f} > 1, \quad (1)$$

где  $C_s$ ,  $C_f$  — теплоемкость соответственно выделенной совокупности критических колебаний и остальных мод СЭ пленки;  $\tau_s$ ,  $\tau_f$  — время релаксации энергии соответственно из разогретой подсистемы фононов мягкой моды и из сегнетоэлектрической пленки в подложку. Интегральные характеристики пленки  $C_f$  и  $\tau_f$  могут быть измерены достаточно точно [8]. Две другие величины ( $C_s$  и  $\tau_s$ ) таким свойством не обладают из-за неточности определения верхней границы энергии фононов, входящих в состав подсистемы. Для разрешения существующих неопределенностей необходимы специальные исследования.

На рис. 1 приведена структура планарного конденсатора на основе пленки твердого раствора  $(\text{Ba}_{0.4}, \text{Sr}_{0.6})\text{TiO}_3$ . В его состав входят подложка  $1.5 \times 1.0 \times 0.5 \text{ mm}$  из монокристалла  $\text{MgO}$ , сегнетоэлектрическая пленка толщиной  $12 \mu\text{m}$  и два электрода, отделенных узким ( $15 \mu\text{m}$ ) зазором. Малогабаритная термопара (хромель—копель), один из спаев

которой находился в тепловом контакте с электродом конденсатора (рис. 1), была использована для измерения температуры многослойной структуры. Контроль температуры подсистемы мягких фононов осуществлялся по измеренным значениям емкости планарного конденсатора.

Генерация в сегнетоэлектрике избыточных фононов мягкой моды приводит к сдвигу собственной частоты ( $\omega_i$ ) такого типа колебаний кристаллической решетки и соответственно вызывает изменение ( $\epsilon^{-1} \sim \omega_i^2 + \delta\omega_i^2$ ) диэлектрической проницаемости сегнетоэлектрика. Возникающее приращение квадрата частоты  $\delta\omega^2(q)$  можно оценить, используя приближение самосогласованного поля:

$$\delta\omega_i^2(q) = \sum_{j,k} V_{ijqk} \frac{\delta n_{jk}}{\omega_j(k)}, \quad (2)$$

где  $\delta n_{jk}$  — избыточная концентрация мягких фононов;  $V_{ijqk}$  — константы ангармонизма;  $q, k$  — волновые вектора оптических колебаний решетки. Воздействие монохроматического поля накачки на поликристаллический образец и присутствие многофононных процессов в веществе обеспечивают неравновесное состояние подсистемы критических фононов, соответствующих области конечной ширины вблизи дна ( $q = 0$ ) дисперсионной характеристики  $\omega(q)$ . При высоких температурах ( $\hbar\omega(0) \ll kT$ ) добавку  $\delta n$  к равновесной функции распределения в первом приближении можно представить в виде

$$\delta n = \begin{cases} \frac{k(T - T_0)}{\hbar\omega} & \text{при } \omega < \omega_m, \\ 0 & \text{при } \omega > \omega_m, \end{cases} \quad (3)$$

где  $T$  — температура выделенной подсистемы фононов;  $T_0$  — температура термостата, функцию которого выполняет совокупность некритических колебаний кристаллической решетки;  $\hbar\omega_m$  — верхняя граница для энергии избыточных фононов. Если частота накачки превышает низшую частоту мягкой моды  $\omega_s(0)$ , то неравновесные фононы сосредоточены главным образом между этими частотами. Соотношения (2)–(3) показывают, что в качестве меры, характеризующей неравновесное состояние мягкой моды, может быть использована температура  $T$  как параметр, характеризующий заселенность состояний выделенной подсистемы. Параметр  $T$ , при всей сложности его строгого термодинамического обоснования, имеет свои преимущества. Во-первых,

уравнение баланса энергии

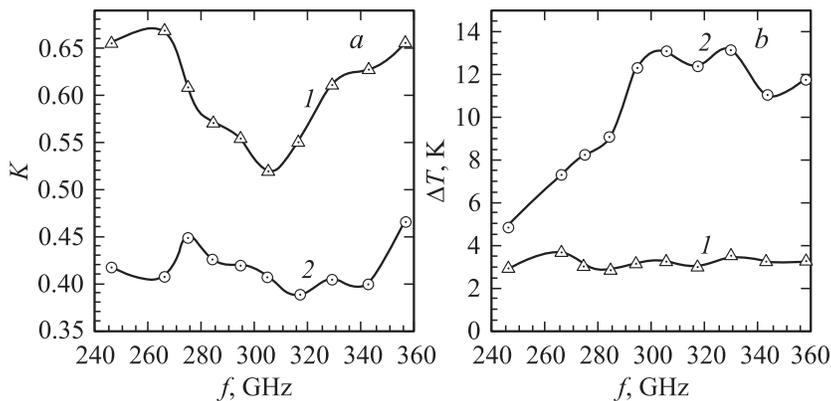
$$P = C_s \frac{T - T_0}{\tau_s} \quad (4)$$

определяет чувствительность температуры подсистемы к мощности ( $P$ ) накачки, поглощаемой сегнетоэлектриком. Во-вторых, перегрев ( $T - T_0$ ) мягкой моды пропорционален разности обратных диэлектрических проницаемостей ( $T - T_0 \sim (\epsilon^{-1} - \epsilon_0^{-1})$ ) сегнетоэлектрика, которая является измеряемой величиной.

Экспериментальные данные о температурном поведении обратной емкости исследуемых образцов в области 270...340 К с высокой точностью описывается линейной функцией  $C^1 \sim (T - T_C)$  с параметром  $T_C = 210$  К. Измерения, выполненные с помощью RLC-метра (E7-12), позволили снизить до 8% погрешность измерения приращения температуры (для  $\Delta T > 2$  К) подсистемы критических фононов, индуцированного полем накачки.

Источник электромагнитной накачки в процессе эксперимента создавал поток энергии, который распространялся в направлении от свободной поверхности подложки к сегнетоэлектрической пленке (рис. 1). Пластина из MgO объемом  $1.5 \times 1 \times 0.5 \text{ mm}^3$  имеет широкий спектр резонансных частот для электромагнитного поля миллиметрового диапазона. На рис. 2 приведены результаты исследования частотной зависимости коэффициента пропускания  $K$  (рис. 2, *a*) и перегрева  $\Delta T$  (рис. 2, *b*), индуцированного накачкой, при использовании чистой пластины из MgO и пластины с сегнетоэлектрической пленкой. Измерение приращения температуры выполнено с помощью термопары в условиях слабой тепловой связи исследуемого образца с термостатом. Отметим, что характеристика  $\Delta T(f)$  отражает частотное поведение интегрального коэффициента поглощения исследуемого объекта. Экспериментальные данные (рис. 2) свидетельствуют о наличии электромагнитного резонанса в чистой пластине MgO, добротность которого заметно уменьшается в присутствии сегнетоэлектрической пленки.

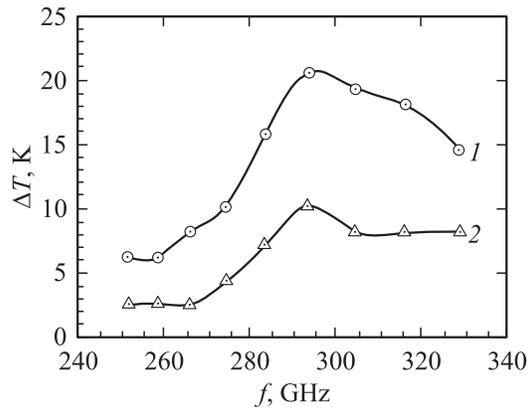
Сравнительный анализ результатов, приведенных на рис. 2, *b*, показывает, что: 1) сегнетоэлектрическая пленка играет определяющую роль в поглощательной способности структуры; 2) перегрев структуры  $\Delta T(f)$  (рис. 2, *b*) и соответственно коэффициент поглощения сегнетоэлектрической пленки зависят от частоты воздействующего излучения. Однако зависимость  $\Delta T(f)$  (рис. 2, *b*) характеризует суммарный эффект



**Рис. 2.** Зависимости коэффициента пропускания  $K(f)$  и изменения температуры  $\Delta T(f)$  пластины  $1.5 \times 1.0 \times 0.5 \text{ mm}^3$  из окиси магния без пленки 1 и с пленкой  $(\text{Ba}_{0.4}, \text{Sr}_{0.6})\text{TiO}_3$  2 от частоты электромагнитного излучения при  $T = 293 \text{ K}$ .

частотно-зависимого поглощения мягкой модой энергии накачки на фоне низкочастотного электромагнитного резонанса в структуре.

Облучение конденсаторной структуры (рис. 1) электромагнитным полем с интенсивностью  $\sim 6 \text{ mW/mm}^2$  вызывает уменьшение емкости планарного конденсатора. Приращение емкости зависит от частоты накачки и имеет максимум, в котором достигается более чем двадцатипроцентное уменьшение емкости. Отметим, что перегрев планарного конденсатора, возникающий при этом, способен вызвать только десятипроцентное уменьшение его емкости. Для упрощения дальнейшего анализа мы отобрали результаты эксперимента в виде данных (рис. 3) об увеличении температуры составных частей структуры, которые измерены с помощью термодатчика ( $\Delta T$ ) и емкостного термометра ( $\Delta T_s$ ). Оба термометра зафиксировали немонотонный характер зависимости приращения температуры от частоты накачки и выявили заметное расхождение ( $\Delta T_s > \Delta T$ ) в своих показаниях: максимальное отличие температуры сегнетоэлектрической пленки от температуры подложки достигает величины порядка десяти градусов. Столь значительный перепад температур не удается обосновать в рамках тепловой задачи о перегреве пленки, нанесенной на диэлектрическую подложку, поглощае-



**Рис. 3.** Изменение температуры планарного конденсатора на основе пленки  $(\text{Ba}_{0.4}, \text{Sr}_{0.6})\text{TiO}_3$  при воздействии монохроматического излучения разной частоты, зафиксированное с помощью емкостного термометра 1 и термопары 2 при  $T_0 = 293$  К.

мой мощностью порядка одного милливатта. Возникшее противоречие можно разрешить, предположив, что в сегнетоэлектрической пленке накачка индуцирует переход подсистемы собственных критических колебаний кристаллической решетки в состояние с более высокой, чем для остальных колебательных мод, температурой.

Как следует из (1), перегрев подсистемы возможен при выполнении условия  $C_s/C_f < \tau_s/\tau_f$ . Это неравенство еще более усиливается ( $C_s/C_f \ll \tau_s/\tau_f$ ) при согласовании измеренного перепада температур и величины поглощаемой мощности ( $P$ ). Есть основания ожидать, что теплоемкость подсистемы  $C_s$  может быть аномально мала. Вклад в  $C_s$  дают состояния нижней части спектра мягкой моды, относительное количество  $\delta N/N$  которых определяется соотношением:

$$\frac{\delta N}{N} = \left( \frac{\omega_m - \omega_0}{\omega_0} \right)^{3/2} \left( \frac{\omega_0}{\omega_l} \right)^3, \quad (5)$$

где  $\omega_l$  — предельная частота продольной оптической моды. Правая часть (5) представляет собой произведение двух величин с разной степенью малости, способное обеспечить необходимую величину теп-

лоемкости. Время релаксации ( $\tau_s$ ) энергии из подсистемы может существенно превосходить среднее время жизни фонона ( $\tau_0$ ), в частности благодаря доминирующему вкладу квазиупругих процессов рассеяния в твердых растворах [9]. Сегодня отсутствуют данные даже о порядке величины  $\tau_s/\tau_f$  и необходимы дальнейшие исследования в этом направлении. Проведенный анализ не исключает возможности селективного перегрева подсистемы фононов мягкой моды в сегнетоэлектрической пленке электромагнитным полем с частотой, соответствующей собственному поглощению материала.

В работе исследовано влияние электромагнитного поля накачки миллиметрового диапазона на емкость планарного конденсатора на основе пленки  $(\text{Ba}_{0.4}\text{Sr}_{0.6})\text{TiO}_3$ , измеренную при  $T > T_c$  на частоте 1 МГц. Действие накачки вызывает уменьшение емкости. Наблюдаемое изменение емкости оказалось больше, чем это следует из данных об интегральном перегреве образца. Мы связываем это несоответствие с селективным разогревом подсистемы фононов мягкой моды полем накачки.

Работа выполнена при поддержке РНП 2.1.2.7083 целевой программы „Развитие научного потенциала высшей школы (2006–2008 годы)“.

## Список литературы

- [1] Аронов А.Г., Гуревич В.Л. // ФТТ. 1972. Т. 14. С. 2675.
- [2] Ostapchuk T., Petzelt J. // *Ferroelectrics*. 2002. V. 267. P. 93.
- [3] Ostapchuk T., Petzelt J. et al. // *Phys. Rev. B*. 2002. V. 66. P. 235406.
- [4] Tenne D.A., Soukiassian A. et al. // *J. Appl. Phys.* 2004. V. 96. P. 6597.
- [5] Tkach A., Vilarinho P.M. et al. // *J. Appl. Phys.* 2005. V. 97. P. 044104.
- [6] Petzelt J., Ostapchuk T. et al. // *Phys. Rev. B*. 2001. V. 64. P. 184111.
- [7] Вакс В.Г. Введение в микроскопическую теорию сегнетоэлектриков. М.: Наука, 1973.
- [8] Kozyrev A., Ivanov A. et al. // *J. Appl. Phys.* 2000. V. 88. P. 5334.
- [9] Гуревич В.Л. Кинетика фононных систем. М.: Наука, 1980.