

01;05

Параэлектрик в сильном высокочастотном поле

© А.И. Соколов

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет
„ЛЭТИ“

E-mail: ais2002@mail.ru

В окончательной редакции 31 октября 2007 г.

Рассмотрено изменение эффективной диэлектрической проницаемости сегнетоэлектрика в параэлектрической фазе под действием сильного высокочастотного поля (неравновесный „разогрев“ мягкой моды). Показано, что наиболее отчетливо этот эффект должен проявляться не тогда, когда частота внешнего поля ω_0 близка к частоте мягкой моды ω_{sm} , а вдали от резонанса, при $\omega_0 \ll \omega_{sm}$. Эффективная диэлектрическая проницаемость как функция амплитуды высокочастотного поля найдена с помощью феноменологического подхода, а также в рамках микроскопической теории на основе простой модели сегнетоэлектрика типа смещения.

PACS: 77.80.-e

Первые попытки применить сегнетоэлектрики в параэлектрической фазе в качестве нелинейных сред на высоких частотах были приняты еще в 60-е гг. [1,2]. Тогда же было установлено, что основным препятствием на пути использования этих материалов являются высокие диэлектрические потери. За прошедшие десятилетия удалось снизить потери до приемлемой величины при сохранении высокой управляемости, т.е. чувствительности диэлектрической проницаемости к внешнему электрическому полю. Это вызвало новую волну интереса к параэлектрикам. Однако в процессе разработки тонкопленочных нелинейных элементов было обнаружено, что их реакции на постоянное и переменное внешние поля могут существенно различаться [3]. В частности, переключение (изменение емкости) сегнетоэлектрических конденсаторов импульсным управляющим полем может сопровождаться аномально большими временами релаксации, достигающими при комнатной температуре секунд и даже минут. Эта особенность делает

техническое применение таких нелинейных элементов проблематичным.

Указанная аномалия связана, вероятнее всего, с медленной релаксацией заряда, возникающего на дефектах (ловушках) в приэлектродных областях под действием управляющего напряжения. Ускорить разряд этих областей и резко повысить быстродействие элемента можно, облучая конденсатор светом с энергией кванта, большей ширины запрещенной зоны [4]. Другой способ избежать указанной трудности состоит в том, чтобы в качестве управляющего использовать не постоянное (видеоимпульс), а переменное электрическое поле высокой частоты. Если частота этого поля близка к частоте собственных колебаний мягкой моды (10^{11} – 10^{12} Hz) и амплитуда его достаточно велика, то в материале должно возникнуть неравновесное состояние фононной подсистемы — „перегрев“ мягкой моды, и, как следствие, произойти изменение диэлектрической проницаемости ϵ [5].

Цель настоящего сообщения состоит в том, чтобы выяснить, какие частоты внешнего воздействия являются предпочтительными с точки зрения обеспечения максимальной управляемости нелинейного элемента при минимальном его разогреве высокочастотным полем. Стоит сразу же отметить, что прямой (квазиравновесный) нагрев элемента внешним полем также приводит к изменению ϵ и может рассматриваться как способ управления его емкостью. Однако характерные времена тепловых процессов даже в случае тонкопленочных образцов оказываются на несколько порядков большими, чем типичные решеточные времена для параэлектриков в окрестности температуры фазового перехода T_C ($\sim 10^{-11}$ s), и такой способ управления не позволяет реализовать потенциально возможный уровень быстродействия.

Итак, обязательно ли воздействовать на подсистему кристалла, ответственную за сегнетоэлектрический фазовый переход (мягкую моду), на ее резонансной частоте? Ответ на этот вопрос был бы положительным, если бы мягкая мода обладала выраженными резонансными свойствами. К сожалению, даже в тех редких случаях, когда сегнетоэлектрическая мода не передемпфирована, ее резонансный характер проявляется весьма слабо. Так, при температурах, близких к T_C , рост вещественной части диэлектрической проницаемости ϵ' высококачественных монокристаллов при входе в область дисперсии, прилегающей к частоте мягкой моды ω_{sm} , не превышает, как правило, нескольких десятков процентов. В сегнетоэлектриках же обычного качества (поликристаллах, керамиках и т.п.) зависимость $\epsilon'(\omega)$ выражается

практически монотонно падающей кривой. Это значит, что, подавая на нелинейный элемент управляющее поле с частотой $\omega_0 \approx \omega_{sm}$, мы не получаем сколько-нибудь заметных преимуществ по сравнению с управлением на любых других частотах $\omega_0 < \omega_{sm}$.

С другой стороны, увеличение частоты управляющего поля в пределах интервала $(0, \omega_{sm})$ неизбежно ведет к усилению обычного нагрева образца ввиду того, что мнимая часть диэлектрической проницаемости ε'' и тангенс угла потерь $\operatorname{tg} \delta$ растут с частотой. Таким образом, выбор частоты ω_0 , близкой к ω_{sm} , трудно признать оптимальным, поскольку в этом случае нагрев дает максимально возможный вклад в изменение ε материала, предельно нивелируя роль диэлектрической нелинейности.

Очевидно, ситуацию можно улучшить, сдвигая частоту ω_0 вниз. Этот сдвиг не может быть произвольно большим, так как рабочая частота ω , т.е. частота, на которой производится измерение ε , должна оставаться существенно меньшей ω_0 . Только в этом случае можно будет считать, что параэлектрик обладает некоторой усредненной диэлектрической проницаемостью, зависящей от амплитуды управляющего поля E_0 .

Итак, будем далее полагать, что $\omega \ll \omega_0 \ll \omega_{sm}$. Выведем в этом пределе выражение для эффективной диэлектрической проницаемости $\varepsilon_{eff}(\omega)$ как функции E_0 . Наша задача является квазистатической, и нас не будут интересовать диссипативные эффекты. В этих условиях $\varepsilon_{eff}(\omega) = \varepsilon_{eff}(0)$, и для вычисления статической эффективной диэлектрической проницаемости $\varepsilon_{eff} = \varepsilon_{eff}(0)$ можно использовать разложение Ландау свободной энергии по степеням поляризации P :

$$F = \frac{1}{2} a P^2 + \frac{1}{4} b P^4, \quad (1)$$

где $a = \alpha(T - T_C)$ и $b > 0$; коэффициенты α и b предполагаются, как обычно, не зависящими от температуры. В параэлектрической фазе $a > 0$ и, как легко видеть, $1/a = \chi \approx \varepsilon$. Если материал находится в переменном внешнем поле, то его поляризация может быть записана в виде $P + P_0 \cos(\omega_0 t)$. Подставляя эту сумму в (1) и производя усреднение по периоду поля $2\pi/\omega_0$, нетрудно получить

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon [1 + (3/2)b\varepsilon P_0^2]^{-1}. \quad (2)$$

Выражая далее P_0 через амплитуду управляющего поля, в низшем приближении по E_0 найдем

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon - (3/2)b\varepsilon^4 E_0^2. \quad (3)$$

Изменение диэлектрической проницаемости под действием сильного высокочастотного поля можно найти и в рамках микроскопической теории. Рассмотрим сегнетоэлектрик типа смещения, термодинамика и динамика которого могут быть описаны ангармонической моделью с мнимой затравочной частотой мягкой моды $\omega_{sm}^2(0, 0) = -\alpha^2 = -T_C/C$. Гамильтониан этой модели имеет вид

$$H = (2\varepsilon_0)^{-1} \left[\sum_{\mathbf{q}} (-\alpha^2 + s^2 q^2) \varphi(\mathbf{q}) \varphi(-\mathbf{q}) + (\beta/2) \sum_{\mathbf{q}\mathbf{q}'\mathbf{q}''} \varphi(\mathbf{q}) \varphi(\mathbf{q}') \varphi(\mathbf{q}'') \varphi(-\mathbf{q} - \mathbf{q}' - \mathbf{q}'') \right]. \quad (4)$$

Здесь C — постоянная Кюри, ε_0 — диэлектрическая постоянная, β — константа ангармонизма и $\varphi(\mathbf{q})$ — фурье-компонента поля флуктуаций поляризации. Суммирование по волновым векторам \mathbf{q} , \mathbf{q}' и \mathbf{q}'' проводится в пределах первой зоны Бриллюэна, а частота $\omega_{sm}(\mathbf{q}, T)$ взята для простоты безразмерной. Обращаясь к квазигармоническому приближению (приближению самосогласованных фононов), т.е. выполняя усреднение по тепловым флуктуациям, нетрудно получить [6,7]:

$$\omega_{sm}^2(\mathbf{q}, T) = -\alpha^2 + s^2 q^2 + 3\beta \sum_{\mathbf{q}'} \langle \varphi(\mathbf{q}') \varphi(-\mathbf{q}') \rangle = \omega_{sm}^2(0, T) + s^2 q^2, \quad (5)$$

где символ $\langle \dots \rangle$ обозначает термодинамическое среднее. Поскольку при не слишком низких температурах парный коррелятор $\langle \varphi(\mathbf{q}') \varphi(-\mathbf{q}') \rangle = 2\varepsilon_0 k_B T / \omega_{sm}^2(\mathbf{q}', T)$, уравнение (5) задаст частоту мягкой моды как функцию T :

$$\omega_{sm}^2(0, T) = -\alpha^2 + 6\beta \varepsilon_0 k_B T \sum_{\mathbf{q}'} \omega_{sm}^{-2}(\mathbf{q}', T), \quad (6)$$

где k_B — постоянная Больцмана. Заменяя в (6) сумму интегралом с плотностью состояний $(2\pi)^{-3}$ и решая затем это уравнение в пределе $\omega_{sm}^2(0, T) \ll s^2 q_D^2$, где q_D — импульс обрезания, получим:

$$\omega_{sm}^2(0, T) = (T - T_C)/C, \quad C = \pi^2 s^2 (3\beta q_D k_B \varepsilon_0)^{-1}. \quad (7)$$

Примем далее во внимание, что частота $\omega_{sm}(0, T)$ определяет диэлектрическую проницаемость параэлектрика при $\mathbf{q} = 0$ и $\omega \ll \omega_{sm}$:

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \omega_{sm}^{-2}(0, T), \quad (8)$$

а сама эта частота, согласно уравнению (5), зависит от интенсивности флуктуаций поляризации. Если на образец действует высокочастотное внешнее поле, то к термодинамическому среднему $\sum_{\mathbf{q}'} \langle \varphi(\mathbf{q}') \varphi(-\mathbf{q}') \rangle$ в (5) добавляется неравновесный вклад, связанный с этим полем. Возьмем для простоты переменное поле пространственно однородным. Тогда для неравновесной составляющей поляризации можно будет написать:

$$\text{Re} \varphi_{ne}(\mathbf{q}) = \varphi_{ne}(0) \delta_{0,\mathbf{q}} = P_0 \delta_{0,\mathbf{q}}, \quad (9)$$

где $\delta_{0,\mathbf{q}}$ — символ Кронекера, и вклад этой составляющей в правую часть (5) окажется равным $3\beta P_0^2/2$. В результате для частоты мягкой моды, „разогретой“ высокочастотным полем, и эффективной диэлектрической проницаемости $\varepsilon_{eff}(P_0)$ мы получим:

$$\omega_{sm}^2(0, T, P_0) = (T - T_C)/C + (3/2)\beta P_0^2, \quad (10)$$

$$\varepsilon_{eff}(P_0) = \varepsilon_0 \omega_{sm}^{-2}(0, T, P_0) = \varepsilon [1 + (3/2)\beta \varepsilon \varepsilon_0^{-1} P_0^2]^{-1}. \quad (11)$$

Вторая из этих формул, как нетрудно видеть, эквивалентна выражению (2), полученному в рамках феноменологической теории.

Выражаю благодарность А.М. Прудану за то, что он привлек мое внимание к этой задаче.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ (проект РНП.2.1.2.7083) и РФФИ (проект 07-02-00345).

Список литературы

- [1] DiDomenico M., Johnson D.A., Pantell R.H. // Appl. Phys. 1962. V. 33. P. 1697.
- [2] Вендик О.Г. Сегнетоэлектрики в технике СВЧ. М.: Сов. радио, 1979.
- [3] Kozyrev A., Samoïlova T. et al. // Integrated Ferroelectrics. 2003. V. 55. P. 815.
- [4] Alford N., Petrov P. et al. // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 87. P. 222904.
- [5] Прудан А.М., Мезенов А.В., Ктиторов С.А. // Письма в ЖТФ. 2007. Т. 33. В. 10. С. 33.
- [6] Соколов А.И. // ФТТ. 1974. Т. 16. С. 733.
- [7] Смоленский Г.А., Боков В.А., Исупов В.А., Крайник Н.Н., Пасынков Р.Е., Соколов А.И., Юшин Н.К. Физика сегнетоэлектрических явлений. Л.: Наука, 1985.