

©1994

## РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ В СЛОИСТЫХ СТРУКТУРАХ: СЕГНЕТОЭЛЕКТРИК–НОРМАЛЬНЫЙ МЕТАЛЛ И СЕГНЕТОЭЛЕКТРИК–ВТСП

*О.Г. Вендик, Л.Т. Тер-Мартirosян*

Предложена модифицированная форма дифференциального уравнения, описывающего распределение динамической поляризации в сегнетоэлектрическом слое. Найдено распределение поляризации и напряженности электрического поля в слое сегнетоэлектрика. Получено выражение для усредненной по толщине слоя диэлектрической проницаемости в случае электродов из нормального металла (нулевые граничные условия для поляризации) и в случае электродов из металлооксидного высокотемпературного сверхпроводника, в котором предполагается наличие также сегнетоэлектрических свойств. Во втором случае размерные эффекты оказываются в значительной степени подавленными.

Реализация приборов, использующих слоистые структуры на основе тонких (менее  $1 \mu\text{m}$ ) сегнетоэлектрических пленок (см., например, [1–5]), делает актуальным детальное исследование задачи о размерных эффектах, т.е. исследовании влияния границ сегнетоэлектрического слоя на его эффективные характеристики.

Решающую роль в проявлении размерных эффектов играет вид граничных условий для поляризации [6,7]. Граничные условия для компонент вектора поляризации на границе между сегнетоэлектрическим слоем и электродом обычно принимаются в виде  $P=0$  [6,8,9]. Этот случай соответствует наличию сильного краевого поля, приводящего к «вымораживанию» сегнетоэлектрической поляризации на границе с кристаллической решеткой металла.

Ранее был выполнен анализ для случая, когда вектор динамической поляризации в сегнетоэлектрическом слое параллелен его поверхностям при нулевых граничных условиях для поляризации на поверхностях слоя [6]. Вместе с тем размерный эффект гораздо сильнее проявляется, когда вектор поляризации перпендикулярен поверхностям тонкого сегнетоэлектрического слоя; исследованию такой ситуации и посвящена настоящая работа.

Особый интерес представляет случай, когда электроды выполнены из металлооксидного высокотемпературного сверхпроводника (ВТСП), кристаллическая решетка которого близка к кристаллической решетке сегнетоэлектриков кислородно-октаэдрического типа.

ВТСП имеют ряд общих черт с сегнетоэлектриками кислородно-октаэдрического типа [10,11]; в связи с этим обсуждается вопрос о существовании сверхпроводниковых и сегнетоэлектрических свойств в ВТСП [10,12]. Очевидно, что непосредственное экспериментальное

исследование сегнетоэлектрических свойств ВТСП затруднено вследствие высокой проводимости ВТСП даже в нормальном состоянии; поэтому исключительный интерес представляют косвенные методы, дающие возможность судить о наличии сегнетоэлектрических свойств у ВТСП [10].

Одним из таких методов может быть изучение размерных эффектов в конденсаторных структурах с электродами из ВТСП. Если ВТСП не обладает сегнетоэлектрическими свойствами, то граничное условие для поляризации на границе сегнетоэлектрического слоя с ВТСП-электродом, вероятнее всего, будет иметь вид  $P=0$ , так что размерные эффекты будут такими же, как и в случае электродов из нормального металла. Если же предположить, что ВТСП обладает сегнетоэлектрическими свойствами, то поляризация не будет обращаться в нуль на электроде. В этом случае по существу речь должна идти о проявлении «эффекта сегнетоэлектрической близости» на границе между сегнетоэлектриком и ВТСП [13].

### 1. Уравнение для поляризации в слое сегнетоэлектрика

Будем рассматривать тонкий сегнетоэлектрический слой толщиной  $2h$ , поперечные размеры которого много больше толщины. Слой расположен между двумя электродами, ось  $x$  перпендикулярна слою и электродам, вектор поляризации направлен вдоль оси  $x$ . Ввиду симметрии задачи далее ограничимся областью  $x > 0$  (рис. 1). Такая структура представляет собой плоский конденсатор; электрическая индукция не зависит от  $x$ . Распределение поляризации  $P$  и напряженности электрического поля  $E$  по толщине сегнетоэлектрического слоя может быть искажено из-за наличия в слое неоднородно-распределенного объемного заряда. Для упрощения анализа будем предполагать, что в сегнетоэлектрическом слое проводимость равна нулю и избыточный объемный заряд отсутствует. Будем предполагать также, что статические поля в слое отсутствуют, имеется только слабое динамическое воздействие с частотой  $\omega$ .

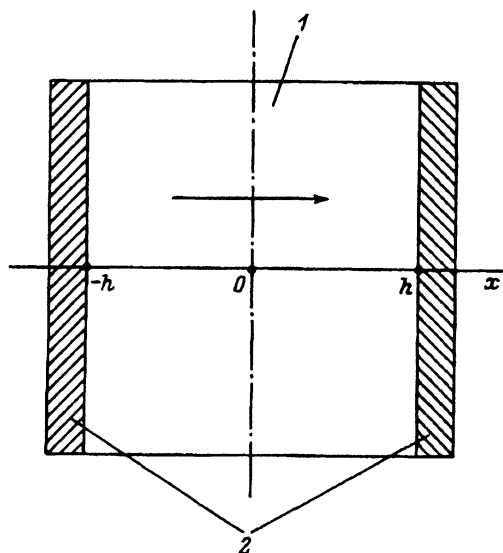


Рис. 1. Конденсаторная структура. 1 — диэлектрик, 2 — электроды. Стрелка показывает направление векторов поля.

Приравнивая нулю вариацию разложения термодинамического потенциала по параметру, получаем уравнение состояния [14,15], которое с учетом корреляционного члена [16] представляет собой дифференциальное уравнение, определяющее координатную зависимость параметра разложения. Поскольку термодинамический потенциал является таковым по отношению к электрической индукции  $\mathbf{D}$ , а не поляризации  $\mathbf{P}$ , в качестве параметра разложения следует выбрать индукцию  $\mathbf{D}$  [15]; однако в слагаемом, связанном с корреляционной энергией, необходимо учесть поляризацию  $\mathbf{P}$ . В результате искомое уравнение принимает вид

$$\frac{2\lambda_1}{\varepsilon_0} \frac{d^2 P}{dx^2} - \frac{D}{\varepsilon_0 \varepsilon} - \frac{D^3}{\varepsilon_0 \varepsilon D_s^2} = -E, \quad (1)$$

где  $\lambda_1$  — корреляционный параметр,  $\varepsilon$  — диэлектрическая проницаемость объемного сегнетоэлектрика при однородной поляризации,  $D_s$  — спонтанная индукция.

В случае слабого переменного поля слагаемым, содержащим  $D^3$ , в (1) можно пренебречь, так что получаем

$$\frac{2\lambda_1}{\varepsilon_0} \frac{d^2 P_{\sim}}{dx^2} - \frac{D_{\sim}}{\varepsilon_0 \varepsilon} = -E_{\sim}. \quad (2)$$

Используя соотношение  $D_{\sim} = \varepsilon_0 E_{\sim} + P_{\sim}$ , получаем для случая нормальной к границе сегнетоэлектрического слоя поляризации ( $D_{\sim}$  не зависит от  $x$ )

$$2\lambda_1 \frac{d^2 P_{\sim}}{dx^2} - P_{\sim} = -\frac{\chi}{\varepsilon} D_{\sim}, \quad (3)$$

где  $\chi = \varepsilon - 1$  — диэлектрическая восприимчивость.

## 2. Конденсаторная структура с электродами из нормального металла

В случае электродов из нормального металла на границе металл-сегнетоэлектрик ( $x = h$ ) сегнетоэлектрическая поляризация равна нулю

$$P_{\sim} = 0. \quad (4)$$

Решение уравнения (3) при нулевых граничных условиях для нормальной компоненты поляризации на границах слоя имеет вид

$$P_{\sim}(x) = \frac{\chi}{\varepsilon} D_{\sim} \left( 1 - \frac{\operatorname{ch} mx}{\operatorname{ch} mh} \right), \quad (5)$$

где  $m = (2\lambda_1)^{-1/2}$ . Напряженность электрического поля

$$E_{\sim}(x) = \frac{D_{\sim}}{\varepsilon_0 \varepsilon} \left( 1 + \chi \frac{\operatorname{ch} mx}{\operatorname{ch} mh} \right). \quad (6)$$

Эффективную диэлектрическую проницаемость конденсаторной структуры найдем исходя из разности потенциалов на электродах

$$\varepsilon_{\text{ef}} = \frac{2hD_{\sim}}{\varepsilon_0 \int_{-h}^h E_{\sim} dx} = \frac{\varepsilon}{1 + \chi(\text{th } mh)/mh}. \quad (7)$$

Ранее была сделана оценка корреляционного параметра для титаната стронция  $\lambda_1 \sim 10^{-19} \text{ м}^2$  [14]; тогда  $m \simeq 2 \cdot 10^9 \text{ м}^{-1}$  и при  $h \geq 5 \text{ нм}$  аргумент гиперболического тангенса  $mh \geq 10$ , так что  $\text{th } mh \simeq 1$  и

$$\varepsilon_{\text{ef}} \simeq \frac{\varepsilon}{1 + (\chi/mh)}. \quad (8)$$

Для применений представляет интерес расчет  $\varepsilon_{\text{ef}}$  для титаната стронция; результаты расчета приведены на рис. 2. Видно, что значительное подавление емкости структуры происходит при толщине сегнетоэлектрического слоя  $2h \leq 10 \text{ мкм}$ . Титанат стронция является виртуальным сегнетоэлектриком [15]; приведенный анализ в равной мере относится к любому сегнетоэлектрику в парафазе.

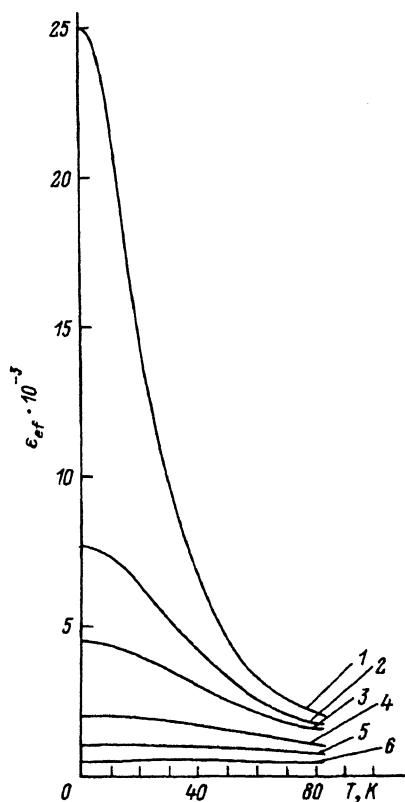


Рис. 2. Температурная зависимость эффективной диэлектрической проницаемости при различной толщине титаната стронция в конденсаторной структуре с электродами из нормального металла.

$2h$  ( $\mu\text{м}$ ): 1 —  $\infty$ , 2 — 100, 3 — 5, 4 — 2, 5 — 1, 6 — 0.5.

### 3. Уравнение для поляризации в слое ВТСП

Предположим для простоты, что материал ВТСП-электрода в рассматриваемом случае обладает такими же сегнетоэлектрическими свойствами, что и диэлектрический слой, и поляризация  $\mathbf{P}$  в материале электрода подчиняется дифференциальному уравнению (3). Кроме того, переменная напряженность электрического поля в ВТСП-электроде подчиняется уравнению Лондонов

$$E_{\sim} = i\omega\mu_0\lambda_L^2 j_s, \quad (9)$$

где  $j_s$  — нормальная к плоскости электрода компонента плотности сверхтока,  $\lambda_L$  — лондоновская глубина проникновения.

Пусть  $\lambda_p$  есть глубина проникновения сегнетоэлектрической поляризации в слой ВТСП

$$\lambda_p = \frac{P_{\sim, II}}{dP_{\sim, II}/dx} \Big|_{x=h}, \quad (10)$$

где индекс II относится к ВТСП; собственно сегнетоэлектрику соответствует индекс I. Примем, что

$$\lambda_p \ll \lambda_L. \quad (11)$$

При выполнении условия (11) можно не учитывать вытеснение тока из сверхпроводника и его растекание по поверхности электрода. Таким образом, на границе сегнетоэлектрик-ВТСП-электрод сохраняется одномерный характер решаемой задачи. При этом можно сказать, что плотности полного тока в собственно сегнетоэлектрике и в ВТСП равны; учитывая, что в сегнетоэлектрике имеется только ток смещения, получаем

$$i\omega D_{\sim, I} = j_s + i\omega D_{\sim, II}. \quad (12)$$

Комбинируя (3), (9) и (12) и используя соотношение

$$D_{\sim, II} = \varepsilon_0 E_{\sim, II} + P_{\sim, II},$$

получаем для поляризации  $P_{\sim, II}$  в ВТСП-электроде уравнение

$$2\lambda_1 \varepsilon \frac{d^2 P_{\sim, II}}{dx^2} - a^2 P_{\sim, II} = b D_{\sim, I}, \quad (13)$$

где использованы следующие обозначения:

$$a^2 = 1 - \frac{\beta\chi}{1-\beta}, \quad (14)$$

$$\beta = \omega^2 \varepsilon_0 \mu_0 \lambda_L^2 = 4\pi^2 (\lambda_L/\lambda_0)^2, \quad (15)$$

$$b = \frac{\beta\chi}{1-\beta}, \quad (16)$$

$\lambda_0$  — длина электромагнитной волны в вакууме.

#### 4. Конденсаторная структура с электродами из ВТСП

По исходному предположению сегнетоэлектрические свойства материала ВТСП-электрода повторяют свойства титаната стронция. Следовательно, значения поляризации  $P$  в сегнетоэлектрике и в сверхпроводнике в непосредственной близости от границы между ними не могут различаться вследствие корреляционных связей; в противном случае резко возрастает корреляционная энергия. Таким образом, сегнетоэлектрическая поляризация проникает на глубину  $\lambda_p$  (определяемую так называемым корреляционным радиусом) в сверхпроводник, несмотря на то что напряженность электрического поля в нем пренебрежимо мала по сравнению с напряженностью поля в сегнетоэлектрике.

Отсюда следует, что на границе между сегнетоэлектрическим слоем и ВТСП-электродом непрерывны поляризация и ее производная по координате

$$P_{\sim, I} = P_{\sim, II}, \quad \frac{dP_{\sim, I}}{dx} = \frac{dP_{\sim, II}}{dx}, \quad x = h. \quad (17)$$

Подставляя решения уравнений (3) и (13) в граничные условия (17), находим значения произвольных постоянных; при этом отбрасываем составляющую  $P_{\sim, II}$ , экспоненциально нарастающую с ростом  $x$ . Вводя обозначение

$$R = \frac{(\chi/\varepsilon) + (b/a^2)}{\text{ch } mh + (\sqrt{\varepsilon}/a) \text{sh } mh}, \quad (18)$$

получаем выражения для координатных зависимостей поляризации и напряженности поля в обеих средах

$$\frac{P_{\sim, I}}{D_{\sim, I}} = -R \text{ch } mx + \frac{\chi}{\varepsilon}, \quad (19)$$

$$\frac{\varepsilon_0 E_{\sim, I}}{D_{\sim, I}} = \frac{1}{\varepsilon} + R \text{ch } mx, \quad (20)$$

$$\frac{P_{\sim, II}}{D_{\sim, I}} = \frac{\sqrt{\varepsilon}}{a} (R \text{sh } mx) e^{-ma(x-h)/\sqrt{\varepsilon}} - \frac{b}{a^2}, \quad (21)$$

$$\frac{\varepsilon_0 E_{\sim, II}}{D_{\sim, I}} = -\frac{\beta}{1-\beta} \left[ 1 + \frac{b}{a^2} - \frac{\sqrt{\varepsilon}}{a} (R \text{sh } mx) e^{-ma(x-h)/\sqrt{\varepsilon}} \right]. \quad (22)$$

Заметим, что при  $T = 77 \text{ K}$   $\lambda_L \simeq 300 \text{ nm}$  даже для весьма высоких частот  $f \simeq 100 \text{ GHz}$ ,  $\beta \simeq 10^{-6}$ . При этом напряженность электрического поля в ВТСП-электроде можно считать равной нулю. Глубина проникновения сегнетоэлектрической поляризации в электрод в соответствии с (21)  $\lambda_p \cong \sqrt{\varepsilon}/m$ . При  $\lambda_1 \simeq 10^{-19} \text{ m}^2$   $\lambda_p = 20 \text{ nm}$ , так что условие (11) надежно выполнено. Подчеркнем, что на границе сегнетоэлектрического слоя в соответствии с (19)  $P_{\sim, I}$  не обращается в нуль.

Учитывая, что  $\beta \ll 1$ ,  $\chi\beta \ll 1$ ,  $a \simeq 1$ ,  $b \ll 1$ , можно упростить выражение (20) для  $E_{\sim, I}$

$$E_{\sim, I} \simeq \frac{1}{\varepsilon_0 \varepsilon} \left( 1 + \frac{\chi \operatorname{ch} mx}{\operatorname{ch} mh + \sqrt{\varepsilon} \operatorname{sh} mh} \right) D_{\sim, I}. \quad (23)$$

Эффективную диэлектрическую проницаемость конденсаторной структуры с ВТСП-электродами можно найти, как и в разделе 2, с помощью соотношения

$$\varepsilon_{\text{ef}} = \frac{2h D_{\sim, I}}{\varepsilon_0 \int_{-h}^h E_{\sim, I} dx} = \varepsilon \left( 1 + \frac{\chi}{mh} \frac{\operatorname{th} mh}{1 + \sqrt{\varepsilon} \operatorname{th} mh} \right)^{-1}. \quad (24)$$

При толщинах сегнетоэлектрика больше нескольких нанометров можно принять  $\operatorname{th} mh \simeq 1$ ; тогда при  $\chi \simeq \varepsilon \gg 1$

$$\varepsilon_{\text{ef}} \simeq \frac{\varepsilon}{1 + \sqrt{\varepsilon}/mh}. \quad (25)$$

Результаты расчета  $\varepsilon_{\text{ef}}(T)$  для титаната стронция приведены на рис. 3. Видно, что при наличии сегнетоэлектрических свойств у ВТСП-электродов заметное влияние размерных эффектов наступает при толщине диэлектрика менее  $0.5 \mu\text{m}$ .

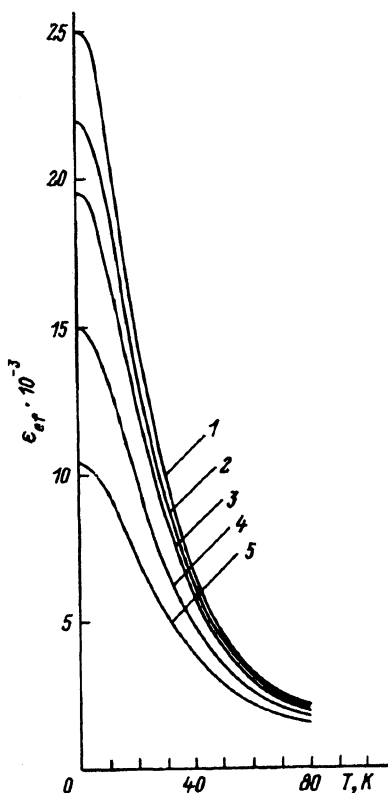


Рис. 3. Температурная зависимость эффективной диэлектрической проницаемости при различной толщине титаната стронция в конденсаторной структуре с электродами из ВТСП.

$2h$  ( $\mu\text{m}$ ): 1 —  $\infty$ , 2 — 1, 3 — 0.5, 4 — 0.2, 5 — 0.1.

## 5. Обсуждение результатов

Предложенная форма дифференциального уравнения состояния позволяет провести полный анализ размерных эффектов в сегнетоэлектрическом слое.

Наиболее сильно размерные эффекты проявляются в случае электродов из нормального металла. В случае электродов из сегнетоэлектрика-сверхпроводника размерные эффекты оказываются в значительной степени подавленными.

В приведенном выше анализе мы ограничились случаем слабого сигнала и не учитывали наличие диэлектрической нелинейности. Вместе с тем легко видеть, что обсуждаемые размерные эффекты (особенно при нулевых граничных условиях для поляризации на электродах) эквивалентны включению последовательно со средней частью диэлектрика емкости с подавленной диэлектрической нелинейностью, так что снижение и сглаживание зависимости  $\epsilon_{ef}(T)$  с уменьшением толщины слоя сопровождается соответствующим снижением диэлектрической нелинейности структуры.

Измерения температурной зависимости емкости плоских конденсаторов на основе сегнетоэлектрика (например, титаната стронция) с металлическими электродами и конденсаторов с электродами из ВТСП позволят внести некоторую ясность в вопрос о наличии сегнетоэлектрических свойств у высокотемпературных сверхпроводников.

Размерные эффекты в случае нормальной к границе поляризации удобно также использовать для экспериментальной оценки значений корреляционного параметра  $\lambda_1$ .

Следует, однако, подчеркнуть, что при изготовлении таких конденсаторных структур необходимо обеспечить высокое качество сегнетоэлектрического слоя между электродами.

Работа выполнена в рамках Государственной программы «Высокотемпературная сверхпроводимость» (проект № 92177).

### Список литературы

- [1] Galt D., Price J.A., Ono R.H. // *Appl. Phys. Lett.* 1993. V. 63. N 22. P. 3078–3080.
- [2] Findikogla A.T., Doughty C., Anlage S.M. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1993. V. 63. N 23. P. 3215–3217.
- [3] Lemanov V.V., Kholkin A.L., Sherman A.B. // *Supercond. Sci. Tehn.* 1993. V. 6. N 12. P. 814–818.
- [4] Walkenhorst A., Doughty C., Xi X.X. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1992. V. 60. N 14. P. 1744–1746.
- [5] Vendik O.G., Ter-Martirosyan L.T., Dedyk A.I. et al. // *Ferroelectrics.* 1993. V. 144. N 1–4. P. 33–43.
- [6] Вендик О.Г., Мироненко И.Г., Тер-Мартirosян Л.Т. // *ФТТ.* 1984. Т. 26. № 10. С. 3094–3099.
- [7] Сегнетоэлектрики в технике СВЧ / Под ред. О.Г.Вендика. М.: Сов. радио, 1979. 272 с.
- [8] Vendik O.G., Rosenberg L.A. // *Proc. of 2nd IMF, J. Phys. Soc. of Jap.* 1970. V. 28. Suppl. P. 413–415.
- [9] Вендик О.Г., Тер-Мартirosян Л.Т. // *ФТТ.* 1985. Т. 27. № 9. С. 2769–2771.
- [10] Muller V., Hucho C., Maurer D. // *Ferroelectrics.* 1992. V. 130. N 1–3. P. 45–76.
- [11] Verbist G., Peeters F.M., Devreese J.T. // *Ferroelectrics.* 1992. V. 130. N 1–3. P. 27–34.
- [12] Golovashkin A.I., Guro G.M., Kovalenko V.J. // *Ferroelectrics.* 1992. V. 130. N 1–3. P. 199–213.
- [13] Леманов В.В. // *Письма в ЖТФ.* 1993. Т. 19. № 22. С. 33–38.



- [14] Вендик О.Г., МIRONЕНКО И.Г. // ФТТ. 1974. Т. 16. № 11. С. 3445-3451.  
[15] Физика сегнетоэлектрических явлений / Под ред. Г.А.Смоленского. Л.: Наука, 1985. 396 с.  
[16] Гинзбург В.Л. // ФТТ. 1960. Т. 2. № 9. С. 2031-2043.

Санкт-Петербургский государственный  
электротехнический университет

Поступило в Редакцию  
21 апреля 1994 г.

---