

Исследование сегнетоэлектрических свойств пленок феррита висмута методом генерации второй оптической гармоники

© Н.Э. Шерстюк, Н.А. Ильин, С.В. Семин, Е.Д. Мишина, В.М. Мухортов*

Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики (Технический университет), Москва, Россия

* Южный научный центр Российской академии наук, Ростов-на-Дону, Россия

E-mail: nesherstuk@mail.ru

Представлены результаты исследования особенностей переключения сегнетоэлектрической поляризации в тонких пленках феррита висмута с ионами неодима методом генерации второй оптической гармоники. Проведены исследования структуры и нелинейно-оптических свойств полученных образцов в широком диапазоне толщин и частот электрического поля при переключении сегнетоэлектрической поляризации в планарной геометрии.

Работа поддержана Министерством образования и науки РФ и Российским фондом фундаментальных исследований (гранты № 06-02-17534, 07-02-00715).

PACS: 77.84.Dy, 42.65.Ky

Одним из наиболее популярных материалов, используемых в настоящее время большинством разработчиков магнитоэлектрических структур, является антиферромагнетик феррит висмута BiFeO_3 , обладающий уникально высокими температурами электрического ($T_C = 1083 \text{ K}$) и магнитного ($T_N = 643 \text{ K}$) упорядочений. Кроме того, показано, что сегнетоэлектрические свойства этого материала сохраняются вплоть до толщин пленок в несколько нанометров [1]. Сравнительно недавно в тонких пленках феррита висмута были продемонстрированы гигантский ($\sim 3 \text{ V/cm} \cdot \text{Oe}$) магнитоэлектрический эффект, величина которого на несколько порядков выше аналогичных значений, полученных при комнатной температуре в других материалах [2], а также пьезоэлектрический эффект, сравнимый по величине с пьезоэлектрическими характеристиками таких материалов, как ниобат лития LiNbO_3 и цирконат-титанат свинца $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$. Интерес к тонким пленкам феррита висмута объясняется также изученным в ряде работ (например, [3]) эффектом возрастания величины спонтанной поляризации более чем на порядок по сравнению со значением в объемных материалах.

Для получения пленок $(\text{Bi}_{0.98}\text{Nd}_{0.02})\text{FeO}_3$ (BNFO) на монокристаллических подложках (001)MgO в настоящей работе использовалась методика высокочастотного распыления керамических мишеней [4]. В зависимости от условий осаждения были получены три типа пленок: монокристаллические BNFO1 (толщиной $d_f = 35, 75, 150$ и 225 nm), поликристаллические с сильно выраженной текстурой BNFO2 ($d_f = 420 \text{ nm}$) и поликристаллические со слабовыраженной текстурой BNFO3 ($d_f = 210 \text{ nm}$). Качество и структура образцов контролировались методом дифракции рентгеновских лучей.

Для исследования особенностей переключения сегнетоэлектрической поляризации при приложении перемен-

ного электрического поля на поверхности пленок методом фотолитографии формировалась планарная встречно-штыревая система электродов, подробное описание которой приведено в работе [5].

Как было показано ранее [5], нанесенная на поверхность исследуемой пленки встречно-штыревая система электродов представляет собой металлodieлектрическую дифракционную решетку, период которой определяется суммарной шириной электрода и зазора между электродами.

Для проведения экспериментальных исследований методом генерации второй оптической гармоники использовалось излучение перестраиваемого Ti:sap -лазера с длительностью импульса $\sim 100 \text{ fs}$, частотой повторения $\sim 100 \text{ MHz}$, плотностью энергии в импульсе $\sim 5 \text{ nJ}$, излучением в диапазоне длин волн $740\text{--}810 \text{ nm}$. Измерения проводились в геометрии нелинейной дифракции „на просвет“, при этом система регистрации, состоящая из фотоэлектронного умножителя, усилителя и счетчика фотонов, устанавливалась в положение, соответствующее направлению на первый дифракционный максимум.

Вначале нами были исследованы дифракционные зависимости интенсивности второй гармоники (ВГ) для монокристаллических пленок серии BNFO1, измеренные до приложения электрического поля на различных длинах волн излучения лазера. Положение пиков интенсивности ВГ соответствовало условию образования главных максимумов при дифракции на решетке $d \sin \varphi = k\lambda_{2\omega}$, где $\lambda_{2\omega}$ — длина волны излучения ВГ, d — период дифракционной решетки, определяемый как сумма ширины электрода и зазора между электродами встречно-штыревой электродной системы. При изменении длины волны излучения не наблюдалось спектральных особенностей, кроме определенных условием формирования дифракционных максимумов.

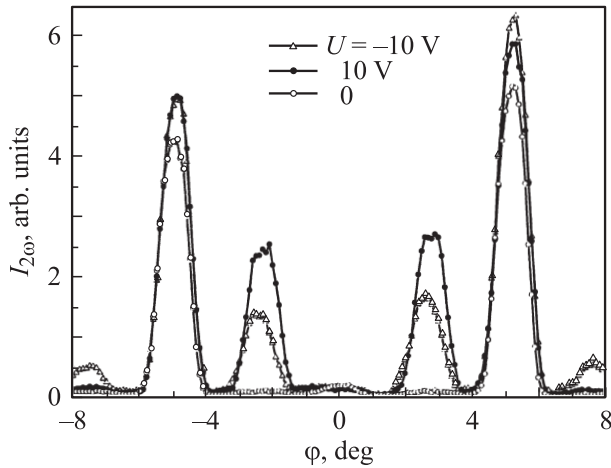


Рис. 1. Дифракционные зависимости интенсивности ВГ при приложении постоянного электрического напряжения величиной ± 10 В. Образец BNFO1 (монокристаллическая пленка), толщина пленки 70 нм, длина волны излучения лазера 770 нм, период электродной структуры $2.2 \mu\text{м}$.

Дифракционные зависимости интенсивности ВГ для монокристаллической пленки толщиной 70 нм при приложении постоянного напряжения величиной ± 10 В приведены на рис. 1. Для данного планарного конденсатора период дифракционной решетки составляет $4.4 \mu\text{м}$. При приложении постоянного электрического поля возникают дополнительные дифракционные максимумы на углах дифракции $\varphi = \pm 2.5^\circ$, обусловленные удвоением периода дифракционной решетки, связанным с перераспределением состояния поляризации в системе [5]. Поскольку электроды непрозрачны, а подложка centrosymmetric, весь сигнал ВГ генерировался в мультиферроидной пленке. Как видно из рисунка, данный образец обеспечивает высокий контраст переключения сегнетоэлектрической поляризации.

Аналогичные зависимости, полученные для поликристаллических пленок BNFO2 и BNFO3, также демонстрируют высокий контраст переключения сегнетоэлектрической поляризации, однако для поликристаллических пленок характерно более неоднородное некогерентное рассеяние сигнала ВГ, особенно сильно проявляющееся в случае поликристаллической пленки со слабовыраженной текстурой.

Особенности поведения сегнетоэлектрической поляризации были исследованы методом генерации ВГ при приложении к электродам переменного пилообразного напряжения с частотами 0.01 Hz–10 kHz; при этом максимальная величина напряженности электрического поля в зазоре составляла ~ 50 kV/cm. Для проведения исследований в режиме переменного поля счетчик фотонов был синхронизован с генератором переменного напряжения, регистрация осуществлялась в режиме стробирования с шириной окна, равной $1/(50f)$, где f — частота переменного напряжения.

Зависимости интенсивности сигнала ВГ от приложенного электрического поля могут быть описаны выражением [6]

$$I^{2\omega}(E) \propto (E_{bg}^{2\omega})^2 + (P_0 + \xi P(E))^2, \quad (1)$$

где $E_{bg}^{2\omega}$ — некогерентная составляющая непереключаемой (не зависящей от внешнего электрического поля) части поля ВГ, $P(E)$ — зависящая от внешнего электрического поля (переключаемая) сегнетоэлектрическая поляризация, P_0 представляет собой суммарный вклад остаточной поляризации и когерентной составляющей непереключаемой поляризации, ξ — характеризующий эффективность переключения коэффициент пропорциональности, величина которого определяется факторами Френеля и нелинейной восприимчивостью. В случае, когда $\xi P(E) \gg P_0$, петли симметричны относительно нулевого напряжения. Уменьшение переключаемой части поляризации относительно непереключаемой приводит к асимметризации петли вплоть до вырожденного „квазилинейного“ типа [6].

На рис. 2 приведены зависимости интенсивности ВГ $I_{2\omega}$ от величины приложенного переменного электрического поля различной частоты (нелинейно-оптический гистерезис) для монокристаллических пленок толщиной 35 нм. Нелинейно-оптический гистерезис, соответствующий остаточной поляризации в данном образце, наблюдался только при малых, порядка 10 мГц, частотах. Уменьшение ширины петель при увеличении частоты свидетельствует об уменьшении потерь, т. е. о получении пленок, удовлетворяющих условиям создания высокочастотных устройств.

В монокристаллических пленках большей толщины, так же как и в поликристаллических пленках, остаточной поляризации не наблюдается во всем исследуемом диапазоне частот. Соответствующие зависимости для

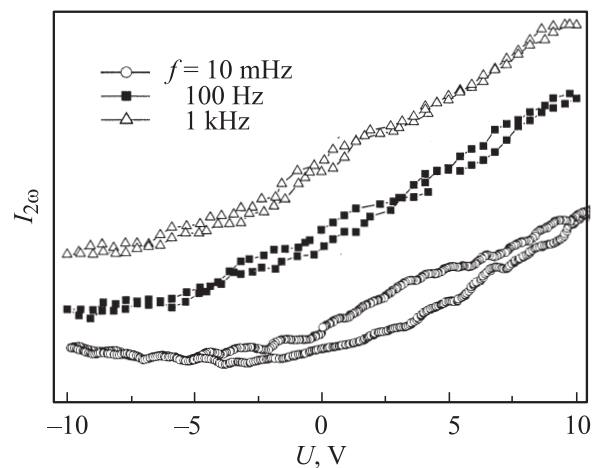


Рис. 2. Зависимость интенсивности ВГ от приложенного переменного напряжения различной частоты для монокристаллической пленки толщиной 35 нм. Для наглядности зависимости смещены относительно друг друга по вертикальной оси.

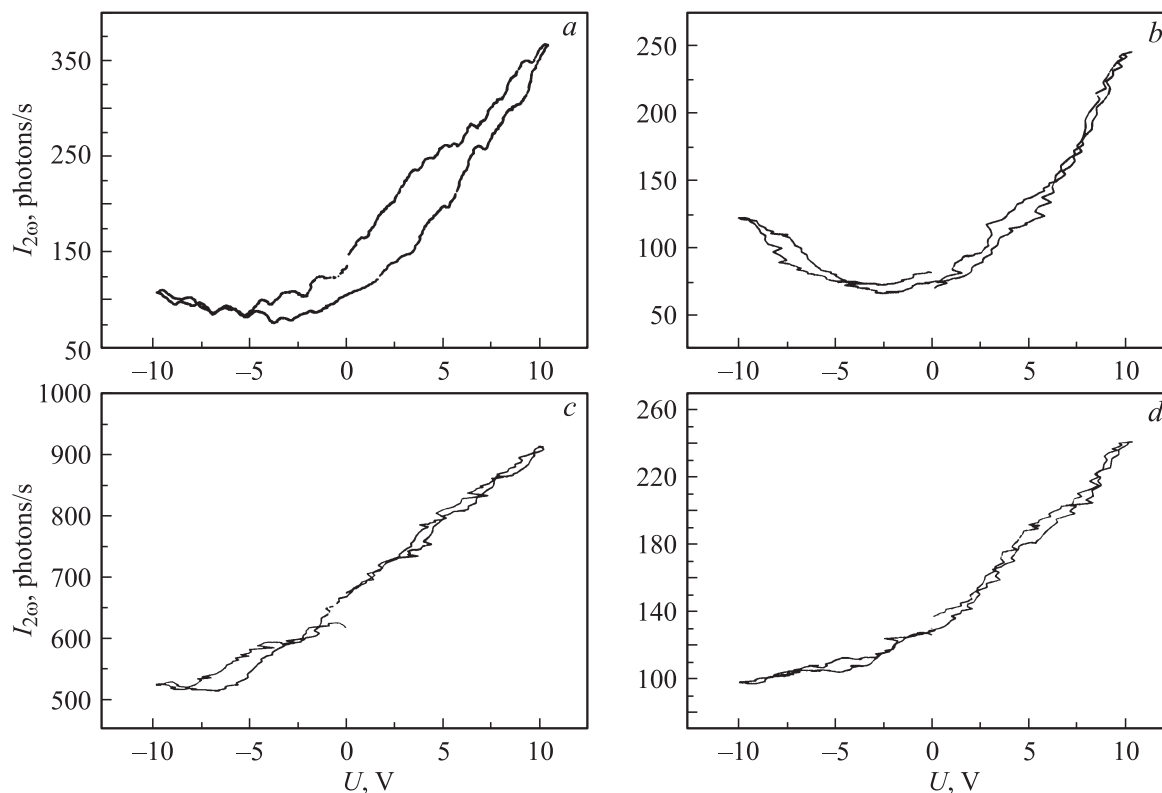


Рис. 3. Зависимости интенсивности ВГ от приложенного переменного напряжения на частоте 10 мГц для монокристаллических пленок толщиной 35 (a), 70 (b), 150 (c) и 225 нм (d).

частоты переменного электрического поля $f = 10$ мГц показаны на рис. 3. Как видно из рисунка, значительная асимметрия петель нелинейно-оптического гистерезиса относительно начала координат, а также величина не зависящего от внешнего поля фона позволяют предположить наличие в пленках непереключаемой части сегнетоэлектрической поляризации, сравнимой по величине с $P(E)$.

В результате аппроксимации при помощи соотношения (1) экспериментальных результатов, полученных для монокристаллических пленок, было показано, что с увеличением толщины снижается эффективность переключения и возрастает величина непереключаемой составляющей сегнетоэлектрической поляризации. Наибольшая эффективность переключения наблюдается для пленки толщиной 70 нм, для которой характерны также минимальные значения величин, определяемых непереключаемой поляризацией.

Таким образом, методом магнетронного распыления были получены гетероэпитаксиальные пленки феррита висмута с ионами неодима, демонстрирующие значительный нелинейно-оптический отклик и высокий электрический контраст. Высокий контраст нелинейно-оптических характеристик и малые потери позволяют рекомендовать полученные нами монокристаллические пленки для создания на их основе нелинейно-оптических электромагнитных модуляторов.

Список литературы

- [1] H. Bea, M. Bibes, M. Sirena, G. Herranz, K. Bouzehouane, E. Jacquet, S. Fusil, P. Paruch, M. Dawber. *Appl. Phys. Lett.* **88**, 062502 (2006).
- [2] J. Wang, J.B. Neaton, H. Zheng, V. Nagarajan, B. Liu, S.B. Ogale, D. Viehland, V. Venugopalan, D.G. Schlom, M. Wutting, R. Ramesh, U.V. Waghmare, N.A. Spaldin, K.M. Rabe. *Science* **299**, 1719 (2003).
- [3] F. Bai, J. Wang, M. Wutting, J.F. Li, N. Wang, A. Pyatakov, A.K. Zvezdin, L.E. Cross, D. Viehland. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 032511 (2005).
- [4] В.М. Мухортов, В.В. Колесников, Ю.И. Головки, С.В. Бирюков, А.А. Маматов, Ю.И. Юзюк. *ЖТФ* **77**, 97 (2007).
- [5] Е.Д. Мишина, Н.Э. Шерстюк, А.А. Зайцев, В.М. Мухортов, А.С. Сигов. *Изв. РАН. Сер. физ.* **71**, 1424 (2007).
- [6] М.А. Кузнецов, Е.Д. Мишина, А.И. Морозов, А.С. Сигов, Ю.И. Головки, В.М. Мухортов, В.Т. Мошняга. *Нано- и микросистемная техника* **12**, 20 (2007).