

## ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ И ДИНАМИКА РЕШЕТКИ ПЛЕНОК SBN-50 НА ПОДЛОЖКЕ Pt/Si

© 2016 г. А.В. ПАВЛЕНКО<sup>1,2</sup>, А.С. АНОХИН<sup>2</sup>, Л.И. КИСИЛЕВА<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Научно-исследовательский институт физики Южного федерального университета, г. Ростов-на-Дону,

<sup>2</sup>Южный научный центр Российской академии наук, г. Ростов-на-Дону  
e-mail: tolik\_260686@mail.ru

### Введение

Твердые растворы (ТР)  $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$  (SBN) являются одноосными полярными соединениями со структурой тетрагональных вольфрамовых бронз (ТВБ) и обладают уникальным набором свойств, представляющих интерес для фундаментальных и прикладных целей [1]. В последние годы достаточно большое внимание стало уделяться созданию и исследованию гетероструктур на основе тонких пленок SBN, что обусловлено стремительным развитием микроэлектроники, МЭМС и ряда других направлений, в которых нелинейные свойства ниобатов стронция-бария могут быть эффективно использованы. Несмотря на очевидные практические приложения, работ, посвященных комплексному изучению характеристик пленок SBN не много. В данной работе представлены результаты исследования динамики решетки и диэлектрических характеристик пленок SBN в широком диапазоне температур, охватывающем область СЭ-ПЭ фазового превращения.

Газоразрядное напыление пленок на подложку (111)Pt/(001)Si производилось в атмосфере чистого кислорода согласно методике, подробно описанной в [2]. Для получения спектров комбинационного рассеяния света (КРС) использовалось поляризованное излучение аргонового лазера ( $\lambda=514.5$  nm) и микро-КРС спектрометр Renishaw inVia Reflex с NExT-фильтром, позволяющим записывать спектры начиная с 10 см<sup>-1</sup>. Спектры регистрировались по схеме обратного рассеяния с помощью оптического микроскопа Leica, диаметр лазерного пучка на образце составлял 1-2  $\mu\text{m}$ .

Температурные зависимости относительной диэлектрической проницаемости,  $\epsilon/\epsilon_0$ , ( $\epsilon_0$  – электрическая постоянная) и тангенса угла диэлектрических потерь,  $\text{tg } \delta$ , при  $T = 200 - 500$  К в диапазоне частот  $f = 10^3 - 10^6$  Hz получали с помощью стенда на базе LCR-метра Agilent 4980A и терморегулятора Варта ТП 703.

Деполяризованный спектр КРС гетероструктуры SBN/Pt/Si, снятый в геометрии обратного рассеяния, при комнатной температуре приведен на рис. 1. Наибольший вклад в интенсивность спектра пленки SBN вносят три широкие полосы в районе 230 см<sup>-1</sup>, 630 см<sup>-1</sup> и 850 см<sup>-1</sup>, каждая из которых состоит из набора линий (линии от подложки Si экранируются слоем платины). Разложив данный спектр на компоненты, можно выделить 13 мод с частотами  $\nu_1$ - $\nu_{13}$ . Две интенсивные линии с частотами  $\nu_4$  и  $\nu_9$  являются A<sub>1</sub>(TO) фононными модами, которые представляют собой внутренние колебания NbO<sub>3</sub> октаэдра, соответствующие движению ионов вдоль оси Z [3]. Ниобаты стронция-бария принадлежат к структуре ТВБ с тетрагональной точечной группой 4mm и пятью формульными единицами в элементарной ячейке. Для них существуют 135 колебательных мод (3\*45), включая 3 акустические моды. Из пяти неприводимых представлений A<sub>1</sub>, A<sub>2</sub>, B<sub>1</sub>, B<sub>2</sub> и E, только A<sub>2</sub> является неактивным и в КРС и в ИК спектрах. Моды симметрии B активны в КРС, а моды A<sub>1</sub> и E активны и в КРС, и в ИК. Однако соответствующие линии, наблюдаемые в экспериментальных спектрах кристаллов SBN

[4] и в нашем случае (рис. 2), достаточно широки, их количество значительно меньше теоретически предсказанных мод, что связывается, в первую очередь, с катионной неупорядоченностью в структуре ТВБ, и, как следствие, - с нарушением правил отбора по волновому вектору в центре зоны Бриллюэна.

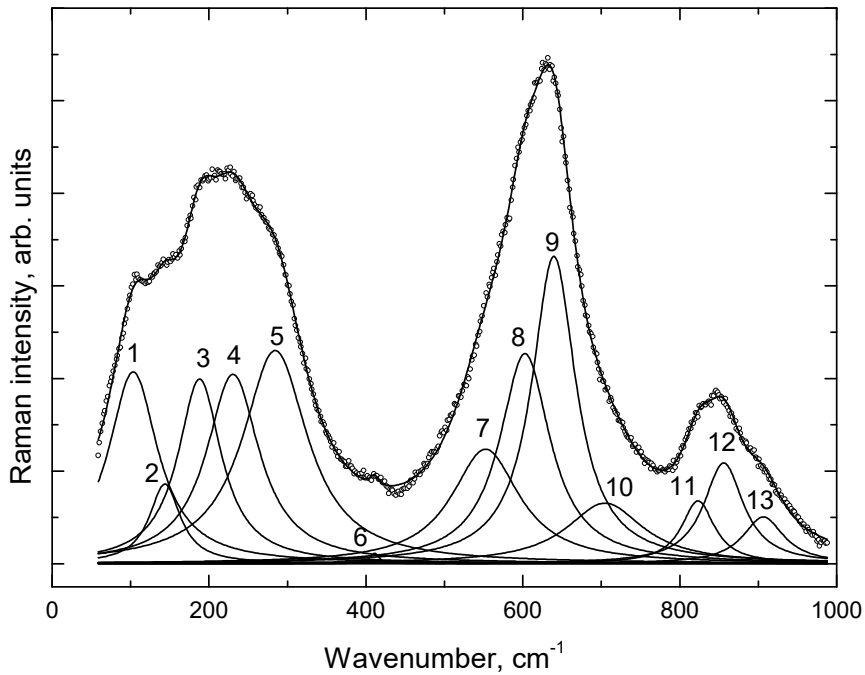


Рис. 1. Деполяризованный спектр КРС SBN/Pt/Si при комнатной температуре.

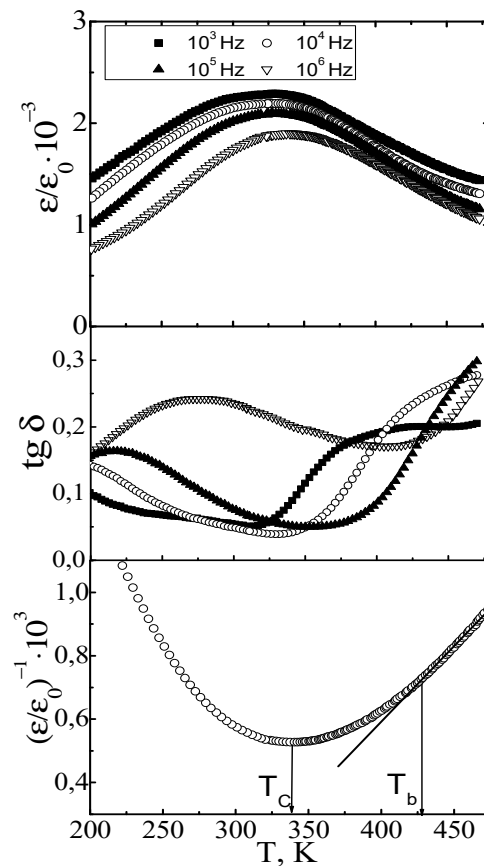


Рис. 2. Зависимости  $\epsilon/\epsilon_0(T)$ ,  $\text{tg } \delta(T)$  и  $(\epsilon/\epsilon_0)^{-1}(T)$  структуры Al/Cr/SBN-50/(111)Pt/(001)Si при  $T = (200 \div 500)$  К на частотах  $f = 103, 104, 105$  и  $106$  Hz.

Так как в элементарной ячейке SBN существуют 132 оптические фононные моды, то возможно вырождение некоторых из них в одну полосу, что вносит дополнительный вклад в уширение КРС спектра. Отметим также, что в сравнении с классическими сегнетоэлектриками, в исследуемых пленках, так же, как и в ряде релаксорных соединений мягкая мода не наблюдалась.

Зависимости  $\epsilon/\epsilon_0(T)$  и  $\text{tg } \delta(T)$  исследуемой гетероструктуры при  $T = 200 - 500$  К и  $f = 10^3 - 10^6$  Hz, полученные в режиме охлаждения, представлены на рис. 2. С ростом температуры наблюдается увеличение  $\epsilon/\epsilon_0$  и формирование при  $T = 320 - 350$  К максимумов,  $T_m$ , сдвигающиеся в область более высоких температур по мере увеличения  $f$  ( $\Delta T = T_m(f = 10^3 \text{ Hz}) - T_m(f = 10^6 \text{ Hz}) = 15$  К). При  $T = 350 - 500$  К - снижение  $\epsilon/\epsilon_0$ , сопровождающееся, сначала уменьшением, а затем - увеличением дисперсии. Из зависимости  $(\epsilon/\epsilon_0)^{-1}(T)$  видно, что выполнение закона Кюри – Вейсса имеет место лишь при  $T \geq T_B$  ( $T_B$  – температура Бёрнса, ниже которой появляются полярные нанообласти), а высокотемпературный склон кривой  $\epsilon/\epsilon_0(T)$  при  $T_m < T < T_B$  хорошо аппроксимируется функцией где  $\gamma = 1.98$  ( $\gamma$  – параметр размытия ФП,  $\epsilon_m$  и  $T_m$  – соответственно, высота и температура максимума  $\epsilon/\epsilon_0(T)$ ).

Полученные в работе результаты свидетельствуют о том, что в пленке SBN в интервале 300 – 425 К происходит размытый ФП из параэлектрической фазы в состояние сегнетоэлектрика-релаксора. Область ФП, в сравнении монокристаллами и керамикой такого же состава, смещена в сторону низких температур, а степень его размытия увеличена. В работе [1] отмечено, что наличие в структуре SBN кислородных вакансий может понижать температуру СЭ перехода в данных соединениях, однако специфика использованного метода напыления пленок при достаточно высоких давлениях кислорода практически исключает этот механизм. Наблюдаемое поведение может быть обусловлено следующими взаимодополняющими причинами: проявлением размерных эффектов в пленочных гетероструктурах, влиянием естественных внутренних электрических полей, связанных с «захватом» свободных носителей заряда, роль которых в пленочных структурах значительна, а так же высокой чувствительностью данных структур к термодинамической предыстории. Последнее, во многом, обуславливается флуктуациями химического состава в структурах ТВБ [1] вследствие неупорядоченного расположения атомов Ва и Sr в структуре и степени заселенности четырех- и пятиугольных каналов атомами Sr в кристаллической решетке. В пользу этого свидетельствует и достаточно большой разброс в значения  $T_m$  для керамик и кристаллов данного состава.

Работа выполнена в рамках гранта РФФИ №16-32-60095 мол\_а\_дк и реализации Государственного задания на 2016 г. № 007-01114-16 ПР (номер проекта 0256-2014-0002) и.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кузьминов Ю.С.. Сегнетоэлектрические кристаллы для управления лазерным излучением. Наука. М. (1982). 400 с.
2. Мухортов В.М., Головки Ю.И., Маматов А.А., Толмачев Г.Н., Бирюков С.В., Масычев С.И. Труды ЮНЦ РАН **2**, 224 (2007).
3. Bartlett K.G., Wall L.S. Temperature study of the polarized Raman spectra of strontium barium niobate // J. Appl. Phys. – 1973. V. 44. P. 5192.
4. Peng L., Jiang K., Zhang J., Hu Z., Wang G., Dong X., and Chu J. Temperature-dependent phonon Raman scattering and spectroscopic ellipsometry of pure and Ca-doped  $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$  ferroelectric ceramics across the phase transition region // J. Phys. D. Appl. Phys. – 2016. V. 49. P. 035307.