

УДК 621.3.049.77.002.5

## О ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЕ ТОНКИХ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПЛЁНОК

© А. А. Соколов, С. Д. Иванов

*Институт автоматизации и электрометрии СО РАН,  
630090 г. Новосибирск, просп. Коптюга, 1  
E-mail: sokolovaa@iae.nsk.su*

Рассмотрены методы определения доменной структуры тонких сегнетоэлектрических плёнок по временной зависимости пироэлектрического отклика на короткий импульсный нагрев поверхности. Задача нахождения распределения пирокоэффициента по толщине из временной зависимости пироэлектрического тока представляет собой решение уравнения Фредгольма 1 рода. Несмотря на то что в общем случае эта задача является некорректной, она решается при дополнительных предположениях о виде резольвенты. Установлено распределение пирокоэффициента по глубине в тонкой плёнке ниобата бария — стронция в предположении о клиновидной форме доменов.

*Ключевые слова:* сегнетоэлектрики, тонкие плёнки, доменная структура, пироэлектрический коэффициент.

DOI: 10.15372/AUT20220207

**Введение.** Форма и расположение доменов в сегнетоэлектрике важны как для понимания процессов переполяризации, фазовых переходов, пироэлектрических и пьезоэлектрических свойств, так и для практических применений. В частности, для пироприменителей поляризация должна быть однородной, а для создания фазовых решёток, квазикристаллов — специальным образом созданной [1]. Если для массивных материалов есть множество методов визуализации доменов, то к плёнкам не все из них применимы. В данной работе анализируется один из методов распределения доменов по глубине плёнки — по временной зависимости пироэлектрического отклика.

Сделать выводы о том, как устроены домены в тонких плёнках одноосного сегнетоэлектрика, можно по поведению временной зависимости пироэлектрического отклика на короткий импульсный или периодический нагрев поверхности плёнки [2–6]. Для монокристаллических и текстурированных плёнок, полярная ось которых перпендикулярна плоскости подложки, доменная структура задаёт зависимость пирокоэффициента от глубины, а задача определения этой зависимости представляет собой решение уравнения Фредгольма 1 рода

$$J_p = \int k_p(x) \frac{\partial T(x, t)}{\partial t} dx,$$

где  $J_p$  — пироэлектрический ток,  $T$  — температура,  $t$  — время,  $x$  — координата,  $k_p(x)$  — искомый пирокоэффициент.

Несмотря на то что в общем случае эта задача является некорректной, она решается при дополнительных предположениях о виде резольвенты [2–6]. Так, в [2] ищется решение в виде кусочно-линейных функций, в [3–4] в виде усечённого ряда Фурье, а в [6] — как интерполяционный многочлен Лагранжа. В частности, решение можно искать в классе полиномов Чебышева [7]. Обычно при выборе класса функций, в котором ведётся поиск решения, исходят из того, чтобы этот класс хорошо приближал гладкие функции. Однако

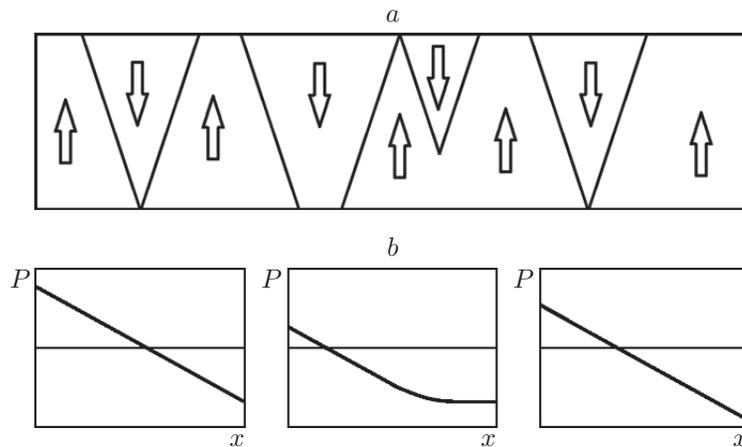


Рис. 1. Структура доменов в плёнке:  $a$  — схематическое расположение доменов,  $b$  — возможное поведение средней поляризации  $P$  и пирокoeffициента по глубине плёнки  $x$

знание о виде распределения пирокoeffициента по глубине, полученное из физических соображений, может радикально уменьшить количество параметров задачи, а главное, эти параметры будут иметь физический смысл.

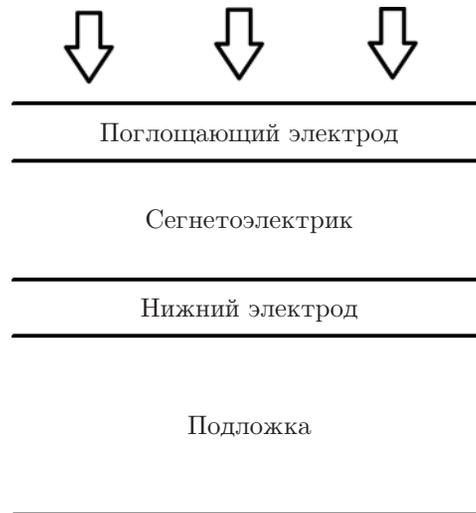
Экспериментально для определения зависимости пирокoeffициента от глубины в [2] регистрировалась временная зависимость пироотклика от импульсного нагрева поверхности, а в [3–6] — зависимость пироэлектрического отклика от частоты при синусоидальной модуляции нагревающего луча лазера (Laser intensity modulation method — LIMM).

В рассмотренных работах предполагалось, что пирокoeffициент зависит только от глубины и нагрев сегнетоэлектрика идёт в пределах одного домена. Часто это условие не выполняется даже для тонких плёнок [1, 8, 9]. В случае нагрева большого числа доменов задача нахождения пиросигнала остаётся одномерной, однако в таком случае следует искать пирокoeffициент как усреднённый на единицу площади.

В [8] показано, что в одноосных монокристаллах домены прорастают клиньями. Для массивных образцов угол клина фиксирован. Для плёнок этот угол может быть другим. Можно предположить его одинаковым для всех доменов в плёнке, как и в кристалле [8]. На рис. 1 схематично показан вид доменов в сегнетоэлектрической плёнке. Для доменов, проросших на всю глубину, усреднённый по площади пирокoeffициент будет линейно зависеть от глубины, причём наклон в этой зависимости определяется углом роста доменов. В случае не полностью проросших доменов переход от наклонной зависимости к константе плавный. Будем искать решение в виде кусочно-линейной функции с одним наклонным участком и одним или двумя участками с нулевым наклоном. Таким образом, в нашей задаче остаются два параметра: угол и глубина прорастания доменов. Описание искомой функции дано в работе [2].

Цель предлагаемой работы — объяснить наблюдаемую зависимость пиросигнала от времени при импульсном нагреве поверхности для тонких сегнетоэлектрических плёнок с помощью кусочно-линейной зависимости пирокoeffициента от глубины. В задаче осталось лишь два подгоночных параметра, что сильно повышает точность и обеспечивает однозначность подгонки. В [1, 8, 9] показано экспериментально и теоретически, что угол прорастания доменов должен меняться вблизи границы сегнетоэлектрика.

**Определение пироэлектрических свойств сегнетоэлектрической плёнки.** Вычислим пироэлектрический отклик структуры, показанной на рис. 2. Верхний и нижний



*Рис. 2.* Структура образца

электроды нужны для регистрации пироэлектрического тока, а подложка — для механической прочности.

Будем полагать электроды теплоизолированными. Их охлаждение определяется только конвекцией и радиационными потерями. Скорость охлаждения для обоих этих механизмов пропорциональна температуре. Заметим, что радиационное охлаждение также пропорционально температуре, а не её четвёртой степени, так как здесь под температурой подразумевается превышение температуры образца над температурой окружающей среды.

Для радиационного охлаждения применимо следующее выражение:

$$W = 4\sigma T_{300}^2 T = 4\sigma T_{300}^2 (T_0 + \Delta T),$$

где  $W$  — скорость охлаждения единицы площади поверхности;  $\sigma$  — постоянная Стефана — Больцмана;  $T_{300} = 300$  К;  $T$  — нагрев от комнатной температуры;  $T_0$  — средняя температура за длительное время при нагреве периодическим излучением той же мощности, что и средняя мощность модулированного излучения;  $\Delta T$  — отклонение температуры от  $T_0$ . Суммарный (конвекция и излучение) теплоотвод также пропорционален температуре.

Для наглядности будем считать, что задняя поверхность подложки выдерживается при нулевой температуре, а на поглощающем электроде охлаждение радиационное и конвекционное. Это не влияет на качественные выводы о форме и природе пироэлектрического сигнала, особенно на структуре, выращенной на подложке, которая много толще плёнки и электродов. На рис. 3, *a* показано распределение температуры в образце при его постоянном нагреве мощностью, равной средней мощности модулированного облучения. На рис. 3, *b* представлено распределение температуры в начале импульса нагрева при периодическом модулированном облучении. При этом считаем, что радиационный перенос тепла сквозь слой образца отсутствует. Изменяя скважность импульсного облучения (нагрева поверхности), можно добиться того, что наиболее резкие изменения температуры будут происходить именно на интересующей нас глубине внутри слоя пироэлектрика.

На рис. 4 представлен результат моделирования зависимости тока от времени, характерный для линейной зависимости пироэлектрического коэффициента от координаты, соответствующей росту доменов в виде клиньев [1, 8, 9].

Качественно такой вид пиросигнала можно объяснить, проанализировав продвижение «тепловой волны» вглубь образца. Для синусоидального нагрева поверхности уравнение

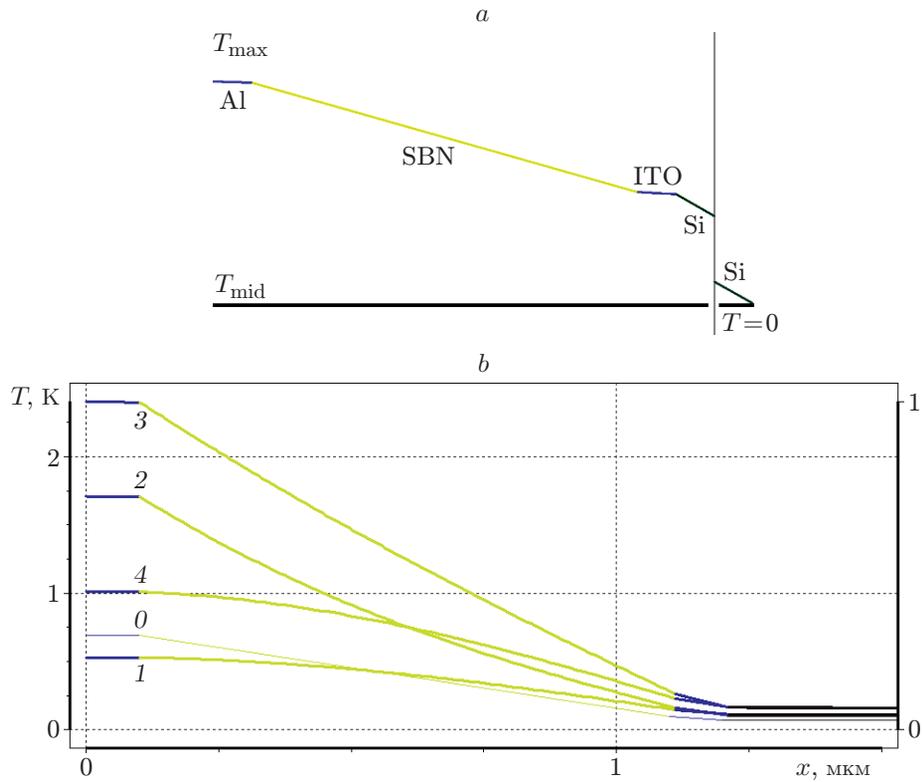


Рис. 3. Зависимость температуры от глубины: *a* — распределение температуры в образце при его постоянном нагреве мощностью, равной средней мощности модулированного облучения. Верхний электрод Al,  $d = 0,1$  мкм; пьроэлектрический слой ниобата бария — стронция (SBN),  $d = 0,5$  мкм; нижний электрод оксид индия — олова (ITO),  $d = 0,1$  мкм; подложка Si,  $d = 10$  мкм; *b* — распределение температуры при периодическом импульсном нагреве со скважностью 1 (1 — в начале импульса, 2 — во время нагрева, 3 — в момент окончания импульса, 4 — в процессе остывания, к началу следующего импульса нагрева — снова 1. 0 — температура при равномерном нагреве той же мощностью)

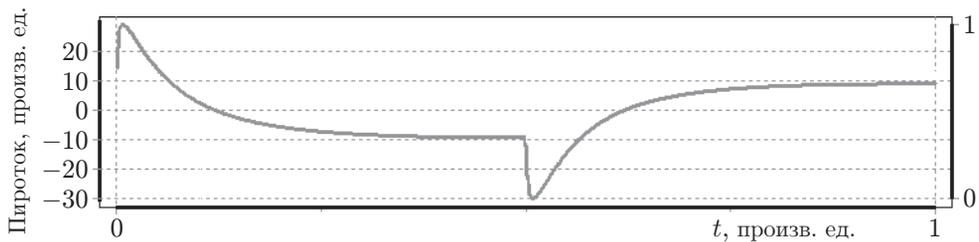


Рис. 4. Зависимость пьроэлектрического сигнала от времени

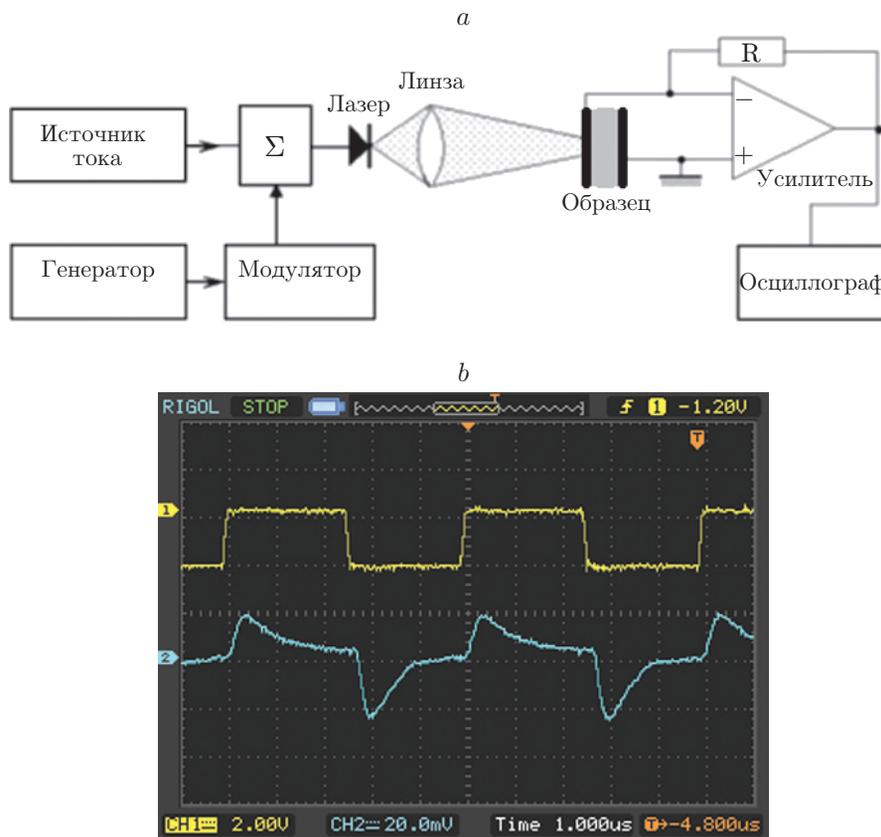


Рис. 5. Результаты измерения пиросигнала: *a* — схема экспериментальной установки, *b* — характерная осциллограмма для неоднородно поляризованного образца

теплопроводности имеет аналитическое решение [10]:

$$T(x, t) = \frac{I_0}{\lambda k} \frac{\sinh(k(d-x))}{\cosh(kd)} e^{i\omega t},$$

где  $I_0$  — поглощённая мощность,  $\lambda$  — теплоёмкость,  $\chi$  — температуропроводность,

$$k = (1+i)\sqrt{\omega/\chi}.$$

Нагрев образца происходит за счёт продвижения «температурной волны», затухающей на расстоянии порядка длины волны. Характерное время прохождения тепла через слой толщины  $d$

$$\tau = d^2/\chi.$$

Заметим, что пирозлектрический ток меняет знак как после включения облучения, так и после прекращения нагрева. Это характерный признак того, что поляризация меняет направление в глубине образца: «тепловая волна» достигает области со встречной поляризацией. Заметим также, что для периодического нагрева интеграл тока по времени равен нулю — общего нагрева или охлаждения не происходит.

Измерения проводились на установке, схема которой представлена на рис. 5, *a* [10]. Модулированный свет лазера нагревает внешний электрод структуры «электрод — SBN —

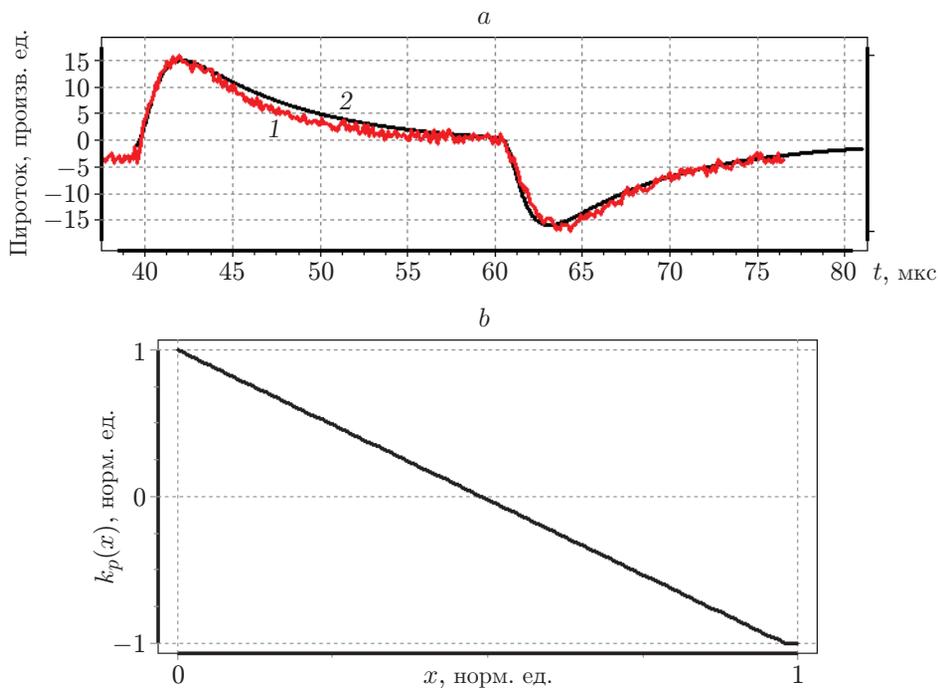


Рис. 6. Результаты определения пирокоэффициента и угла роста доменов в плёнке из зависимости пиротока от времени: *a* — экспериментальная 1 и модельная 2 зависимости пиротока от времени; *b* — распределение пирокоэффициента от координаты для модельной кривой

электрод — подложка». На рис. 5, *b* приведена характерная осциллограмма пироэлектрического сигнала образца. На ней можно видеть признаки того, что сегнетоэлектрик поляризован неоднородно по глубине. А именно пироэлектрический ток убывает быстрее, чем должен при однородной поляризации сегнетоэлектрика.

Найдём распределение пироэлектрического коэффициента по глубине из зависимости тока от времени при периодическом импульсном нагреве поверхности. В нашей задаче два подгоночных параметра. Результат этой аппроксимации показан на рис. 6: определение пирокоэффициента и угла роста доменов в плёнке из данных, полученных расчётом распределения пирокоэффициента по глубине из рис. 4. Видно, что экспериментальная зависимость пиротока от времени хорошо аппроксимируется в рамках нашей модели. Таким образом, решение обратной задачи позволяет найти исходную функцию распределения пирокоэффициента по глубине.

**Заключение.** Анализ методов определения доменной структуры сегнетоэлектрических плёнок показал эквивалентность определения распределения пирокоэффициента по глубине из временной зависимости пиротока и из частотной зависимости пироотклика (ЛИММ). Ввиду того, что в общей постановке задача является некорректной, качество её решения зависит от дополнительных предположений о виде резольвенты. Предположение о клиновидном проращении является экспериментально обоснованным [1, 8, 9]. В данной работе показано, что в рамках данного предположения можно восстановить распределение пирокоэффициента из формы пироэлектрического отклика при импульсном облучении образца. Найденное распределение характеризуется двумя подгоночными параметрами — углом и глубиной проращения доменов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Shur V. Ya.** Domain engineering in Lithium Niobate and Lithium Tantalate: Domain wall motion // *Ferroelectrics*. 2006. **340**. P. 3–16. DOI: 10.1080/00150190600888603.
2. **Анцыгин В. Д., Косцов Э. Г., Соколов А. А.** Пирозлектричество в тонких сегнетоэлектрических плёнках // *Автометрия*. 1986. № 2. С. 30–40.
3. **Lang S. B., Das-Gupta D. K.** Laser-intensity-modulation method: A technique for determination of spatial distributions of polarization and space charge in polymer electrets // *Journ. Appl. Phys.* 1986. **59**, Iss. 6. DOI: 10.1063/1.336352.
4. **Lang S. B.** Laser intensity modulation method (LIMM): Experimental techniques, theory and solution of the integral equation // *Ferroelectrics*. 1991. **118**, Iss. 1. P. 343–361. DOI: 10.1080/00150199108014771.
5. **Bauer S., Ploss B.** A method for the measurement of the thermal, dielectric, and pyroelectric properties of thin pyroelectric films and their applications for integrated heat sensors // *Journ. Appl. Phys.* 1990. **68**, Iss. 12. DOI: 10.1063/1.346882.
6. **Biryukov S. V., Sotnikov A., Weihnacht M.** Laser intensity modulation method: The interpolation procedure for determination of spatial distribution of polarization // *Ferroelectrics*. 2011. **185**, Iss. 1. P. 281–284. DOI: 10.1080/00150199608210533.
7. **Adibi H., Assari P.** Chebyshev wavelet method for numerical solution of fredholm integral equations of the first kind // *Math. Problems in Eng.* 2010. **2010**. ID 138408. DOI: 10.1155/2010/138408.
8. **Shur V. Ya., Kosobokov M. S., Makaev A. V. et al.** Dimensionality increase of ferroelectric domain shape by pulse laser irradiation // *Acta Materialia*. 2021. **219**. DOI: 10.1016/j.actamat.2021.117270.
9. **Shur V. Ya.** Formation and evolution of charged domain walls in congruent Lithium Niobate // *Appl. Phys. Lett.* 2000. **77**, Iss. 22. P. 3636–3638.
10. **Ivanov S. D., Kostsov E. G.** Uncooled thermally uninsulated array element based on thin Strontium Barium Niobate pyroelectric films // *IEEE Sensors Journ.* 2020. **20**, Iss. 16. P. 9011–9017. DOI: 10.1109/JSEN.2020.2987633.

*Поступила в редакцию 17.02.2022*

*После доработки 03.03.2022*

*Принята к публикации 11.03.2022*

---