

НАНОТЕХНОЛОГИИ В ОПТИКЕ И ЭЛЕКТРОНИКЕ

УДК 535.012.21, 535.341, 535.323

ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА
ПЛЁНОК НИОБАТА БАРИЯ-СТРОНЦИЯ В ОБЛАСТИ 0,2–1,3 ТГцВ. Д. Анцыгин¹, А. А. Мамрашев^{1,2}¹*Институт автоматики и электрометрии СО РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Коптюга, 1*²*Институт сильноточной электроники СО РАН,
634055, г. Томск, просп. Академический, 2/3
E-mail: mamrashev@iae.nsk.su*

Знание оптических и диэлектрических свойств плёнок сегнетоэлектриков, в частности ниобата бария-стронция, в терагерцовой области спектра необходимо для разработки и создания на их основе активных элементов и структур для регистрации и управления терагерцовым излучением. Исследования свойств плёнок ниобата бария-стронция состава $x = 0,5$, выращенных на ориентированных сапфировых подложках с нанесённым на них электродом, выполнены методом импульсной широкополосной терагерцовой спектроскопии в области 0,2–1,3 ТГц. Установлено, что плёнки ниобата бария-стронция могут быть использованы для создания устройств управления и регистрации терагерцового излучения.

Ключевые слова: терагерцовая спектроскопия, ниобат бария-стронция, ИТО, сегнетоэлектрические плёнки, пироэлектрические приёмники.

DOI: 10.15372/AUT20170611

Введение. Выращивание плёнок сегнетоэлектриков и структур на их основе методом высокочастотного осаждения известно уже более 30 лет [1]. Плёнки ниобата бария-стронция, полученные данным способом, обладают диэлектрическими и оптическими свойствами, близкими к свойствам монокристалла [2]. Возможное применение плёнок сегнетоэлектриков в качестве активных элементов структур для регистрации и управления терагерцовым (ТГц) излучением требует знания их диэлектрических и оптических свойств в этой области спектра.

Целью данной работы является экспериментальное исследование терагерцовых свойств плёнок ниобата бария-стронция и структур на их основе методами терагерцовой спектроскопии.

Измерения терагерцовых свойств плёнок. Объектом исследования служили плёнки ниобата бария-стронция ($\text{Sr}_{0,5}\text{Ba}_{0,5}\text{Nb}_2\text{O}_6$ — SBN), выращенные методом ВЧ-осаждения на ориентированных сапфировых подложках с нанесённым на них прозрачным в видимой области электродом из оксида индия-олова ($\text{In}_2\text{O}_3 + \text{SnO}_2$ — ИТО). Плёнки SBN имели текстуру, полярная ось которой перпендикулярна плоскости подложки. Толщина плёнок SBN составляла 6–10 мкм, ИТО — приблизительно 400 нм, сапфировых подложек — 450–600 мкм. Исследования проведены на образцах площадью $\geq 1 \text{ см}^2$, часть которых оставалась непокрытой плёнками SBN, что позволило отдельно изучать свойства ИТО.

Измерения пропускания структур ИТО—сапфир, SBN—ИТО—сапфир выполнялись на широкополосном импульсном терагерцовом спектрометре [3]. Генерация и регистрация ТГц-излучения в нём осуществлялись с помощью лазерных импульсов длительностью ~ 100 фс на длине волны 775 ± 5 нм. Для генерации применялась фотопроводящая антенна фирмы Vator GmbH (Германия). Регистрация временной зависимости напряжённости прошедшего через образец терагерцового излучения проводилась в стробоскопическом режиме поляризационно-оптическим методом с помощью кристалла-детектора ZnTe.

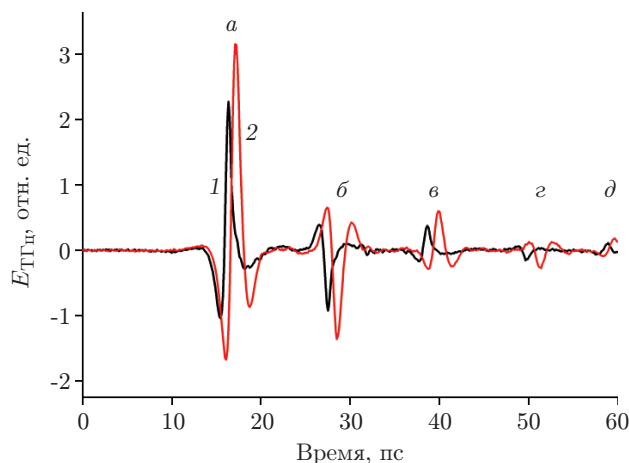


Рис. 1. Напряжённость поля ТГц-импульсов (a — d), прошедших через структуры: ИТО (~ 410 нм)—сапфир (546 мкм) (кривая 1), SBN (~ 10 мкм)—ИТО (~ 410 нм)—сапфир (546 мкм) (кривая 2)

На рис. 1 показан типичный вид напряжённости поля терагерцового излучения, проходящего через структуры ИТО—сапфир и SBN—ИТО—сапфир. Зарегистрированные последовательно во времени четыре импульса (b — d) представляли собой многократные отражения внутри сапфировой подложки. Большая величина прошедшего через вторую структуру ТГц-сигнала показала, что плёнка SBN выполняет в ней роль просветляющего покрытия.

По положениям пиков импульсов b — d во временной области оценивалась толщина сапфировой подложки. Для этого применялась формула $d = c\Delta t/2n_s$, где c — скорость света, Δt — среднее расстояние между последовательными пиками, n_s — показатель преломления сапфира. Для оценки брались значения показателей преломления для обыкновенной ($n_{so} = 3,058$) и необыкновенной ($n_{se} = 3,381$) волн в регистрируемом спектральном диапазоне [4].

Терагерцовые спектры пропускания, полученные фурье-преобразованием ТГц-импульсов, использовались для определения оптических свойств материалов структур. Рассмотрим метод определения терагерцовых свойств плёнок ИТО. Проводились две серии измерений: в присутствии структуры ИТО—сапфир (сигнальный импульс) и без неё (опорный импульс). Их отношение представляло собой экспериментальную функцию пропускания исследуемого образца $H_e(\omega) = E_{\text{sam}}(\omega)/E_{\text{ref}}(\omega)$. Для модельного описания функции пропускания рассматривалось только ТГц-излучение, прошедшее через подложку 1 раз и не испытавшее последовательных отражений на границах подложка — воздух и подложка — плёнка (импульс a на рис. 1), однако учитывались вклады многочисленных отражений в плёнке ИТО. Просуммировав рассмотренные отражения, получим теоретическую функцию пропускания плёнки

$$H_t(\omega) = t_{1,2}t_{2,3}t_{3,1}e^{i(\omega/c)(\tilde{n}_s(\omega)d_s + \tilde{n}_{\text{ИТО}}(\omega)d_{\text{ИТО}})} \frac{1}{1 - r_{3,2}r_{2,1}e^{i(\omega/c)2\tilde{n}_{\text{ИТО}}(\omega)d_{\text{ИТО}}}}, \quad (1)$$

где ω — частота; индексам 1, 2, 3 соответствуют воздух, плёнка ИТО и сапфировая подложка (рис. 2, a); $t_{i,j}$ и $r_{i,j}$ — коэффициенты пропускания и отражения ТГц-излучения при прохождении границы сред с индексами i и j ; d_s и $d_{\text{ИТО}}$ — толщины сапфировой подложки и плёнки ИТО; $\tilde{n}_s(\omega)$ — комплексный показатель преломления сапфировой подложки из работы [4]; $\tilde{n}_{\text{ИТО}}(\omega)$ — неизвестное значение комплексного показателя преломления плёнки ИТО.

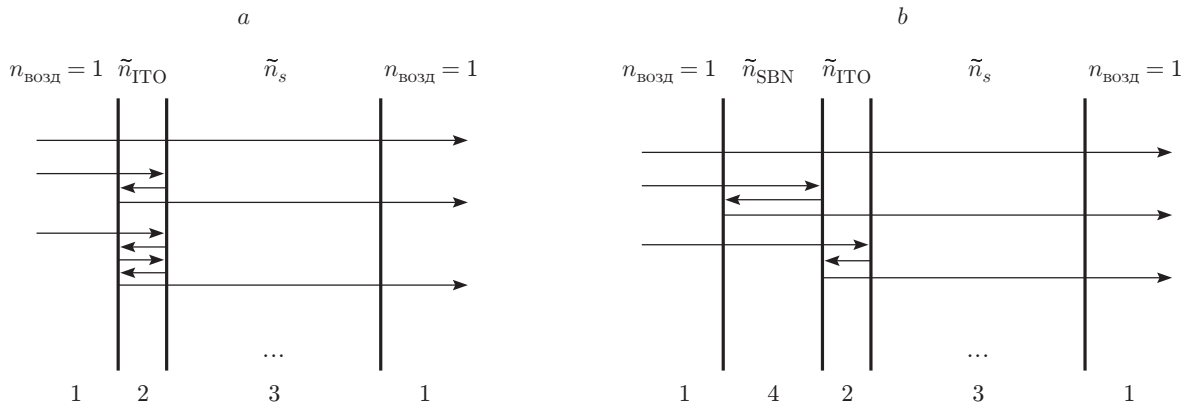


Рис. 2. Схемы распространения терагерцового излучения в структурах: ИТО—сапфир (a) и SBN—ИТО—сапфир (b) (4 — плёнка ниобата бария-стронция)

Комплексный показатель преломления плёнок ИТО $\tilde{n}_{\text{ИТО}}(\omega) = n(\omega) + ik(\omega)$ и их толщины $d_{\text{ИТО}}$ выступали в качестве подгоночных параметров, с помощью которых теоретическая функция пропускания образца $H_t(\omega)$ приводилась к экспериментально измеренной $H_e(\omega)$. По показателю преломления затем вычислялись комплексная диэлектрическая проницаемость $\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$ и проводимость $\sigma(\omega) = \sigma'(\omega) + i\sigma''(\omega)$, где ε' , ε'' и σ' , σ'' — действительные и мнимые части диэлектрической проницаемости и проводимости.

Расчёт параметров плёнки SBN производился аналогичным образом. Применялось модифицированное выражение (1), которое учитывало распространение терагерцового излучения через две плёнки и сапфировую подложку (рис. 2, b). При этом в модели использовались определённые на предыдущем этапе свойства плёнок ИТО.

Экспериментальные результаты и их обсуждение. На широкополосном импульсном ТГц-спектрометре измерено ТГц-пропускание структуры ИТО—сапфир. С использованием полученных экспериментальных результатов рассчитаны оптические и диэлектрические свойства плёнок ИТО, а также их проводимость. Они аппроксимированы моделью Друде, в которой диэлектрическая проницаемость ε и проводимость σ имеют вид

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega/\tau}; \quad \sigma(\omega) = \frac{\varepsilon_0 \omega_p^2 \tau}{1 - i\tau\omega}, \quad (2)$$

где ω_p — плазменная частота; $\varepsilon_{\infty} = 4$ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость ИТО; $\tau = 6,8$ пс — время релаксации импульса носителей заряда в ИТО [5]; $\varepsilon_0 = 8,854 \cdot 10^{-12}$ Ф/м — диэлектрическая проницаемость вакуума. Плазменная частота выступала в качестве подгоночного параметра. Установлено, что наиболее точное приближение экспериментальных результатов моделью Друде обеспечивает значение $\omega_p = 2,07 \cdot 10^{15}$ с⁻¹. Экспериментальные данные и результаты расчётов комплексной проводимости плёнок ИТО представлены на рис. 3.

Соответствующее данной проводимости расчётное низкочастотное поверхностное сопротивление плёнки ИТО толщиной ~ 410 нм составило 10 Ом/□, что согласуется со значением ~ 14 Ом/□, полученным при её измерениях четырёхзондовым методом. Отметим также, что спектральные свойства проводимости плёнок ИТО согласуются с результатами работ [5, 6].

Аналогичным образом по измерениям ТГц-пропускания структур SBN—ИТО—сапфир рассчитаны терагерцовые оптические и диэлектрические свойства плёнок ниобата бария-стронция. На рис. 4 представлены спектральные зависимости комплексного показателя преломления (рис. 4, a) и комплексной диэлектрической проницаемости (рис. 4, b) плёнок SBN от частоты в терагерцовой области спектра.

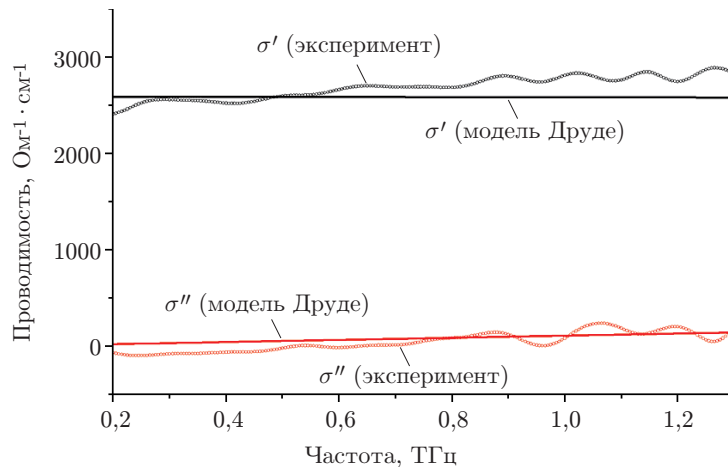


Рис. 3. Действительная (σ') и мнимая (σ'') части комплексной проводимости плёнки ИТО в ТГц-области спектра. Сравнение экспериментальных результатов с моделью Друде

Терагерцовые свойства плёнок $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ состава $x = 0,5$ получены впервые. На рис. 4, *b* видны особенности поглощения с максимумом на частотах 0,3 и 1,05 ТГц. Сведений о терагерцовых свойствах кристаллов SBN состава $x = 0,5$ в литературе нет, однако есть информация об исследованиях кристаллов с $x = 0,35$ [7] и $x = 0,61$ [8] методами комбинационного рассеяния света и ИК-спектроскопии отражения. В них наблюдаются линии на частотах $\sim 25 \text{ см}^{-1}$ (0,75 ТГц), $\sim 35 \text{ см}^{-1}$ (1,05 ТГц) и 47 см^{-1} (1,41 ТГц), близких к наблюдаемым в наших экспериментах.

Плёнки SBN достаточно прозрачны в низкочастотной терагерцовой области (при толщине 10 мкм пропускание по энергии $\geq 0,7$ на частотах ниже 0,7 ТГц), поэтому могут быть использованы в метаструктурах для управления ТГц-излучением. В частности, на их основе могут быть созданы низкочастотные управляемые ТГц-фильтры.

На частотах выше 0,7 ТГц в исследованной структуре SBN—ИТО—сапфир терагерцовое излучение поглощается в основном в плёнке ниобата бария-стронция. Затем более 95 % прошедшего через неё излучения отражается от плёнки ИТО. Рассмотренные свойства указывают на возможность использования плёнок SBN для создания пироэлектрических

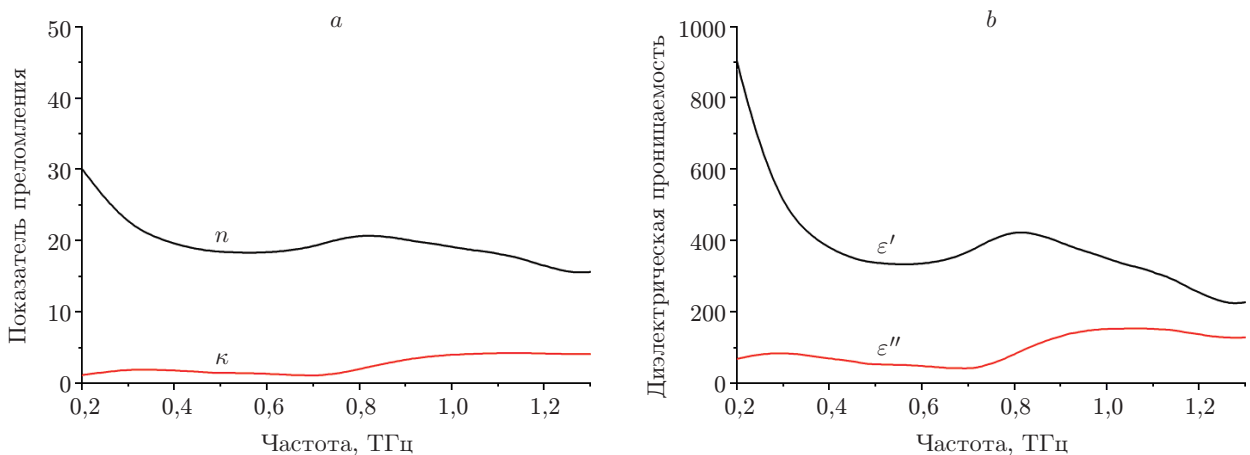


Рис. 4. Терагерцовые свойства плёнки ниобата бария-стронция: комплексный показатель преломления (*a*) и комплексная диэлектрическая проницаемость (*b*)

приёмников импульсного терагерцового излучения [9]. Основой таких приёмников может служить исследуемая структура SBN—ITO—сапфир с нанесённой на её поверхность более высокоомной плёнкой ITO или другого проводника с меньшим отражением. В данном типе пироприёмника поглощение терагерцового излучения непосредственно в объёме плёнки SBN обеспечивает быстрый нагрев и формирование пироэлектрического сигнала, что позволяет регистрировать передний фронт ТГц-импульса с высоким быстродействием. Применение подложки из сапфира, который обладает рекордной теплопроводностью среди диэлектриков, даёт возможность осуществлять быстрый отвод тепла из плёнки SBN и обеспечивает быстродействие при регистрации заднего фронта импульса.

Заключение. В данной работе экспериментально исследованы оптические и диэлектрические свойства плёнок ниобата бария-стронция и структур SBN—ITO—сапфир методом терагерцовой спектроскопии. Показано, что плёнки SBN обладают достаточной прозрачностью на частотах ниже 0,7 ТГц для создания на их базе устройств управления ТГц-излучением. Высокое поглощение плёнок ниобата бария-стронция на частотах выше 0,7 ТГц указывает на возможность разработки терагерцовых пироприёмников на основе структур ITO—SBN—ITO. Плёнки ITO толщиной 410 нм обладают проводимостью $\sim 2500 \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$, что позволяет использовать их в качестве низкоомных электродов в устройствах регистрации и управления ТГц-излучением на базе исследованных структур.

Авторы выражают благодарность д-ру физ.-мат. наук Э. Г. Косцову за образцы плёнок ниобата бария-стронция, предоставленные для исследования.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Дудкевич В. П., Фесенко Е. Г. Физика сегнетоэлектрических пленок. Ростов-на-Дону: Изд-во РГУ, 1979. 190 с.
2. Antsigin V. D., Egorov V. M., Kostsov E. G. et al. Ferroelectric properties of thin strontium barium niobate films // *Ferroelectrics*. 1985. **63**, Is. 1. P. 235–242.
3. Анцыгин В. Д., Лосев В. Ф., Мамрашев А. А. и др. Особенности исследования анизотропных сред методами импульсной терагерцовой спектроскопии // *Автометрия*. 2016. **52**, № 4. С. 71–78.
4. Thomas M. E., Andersson S. K., Sova R. M., Joseph R. I. Frequency and temperature dependence of the refractive index of sapphire // *Infrared Phys. Technol.* 1998. **39**, Is. 4. P. 235–249.
5. Chen C.-W., Lin Y.-C., Chang C.-H. et al. Frequency-dependent complex conductivities and dielectric responses of indium tin oxide thin films from the visible to the far-infrared // *IEEE Journ. Quant. Electron.* 2010. **46**, Is. 12. P. 1746–1754.
6. Yang C.-S., Lin M.-H., Chang C.-H. et al. Non-Drude behavior in indium-tin-oxide nanowhiskers and thin films investigated by transmission and reflection THz time-domain spectroscopy // *IEEE Journ. Quant. Electron.* 2013. **49**, Is. 8. P. 677–690.
7. Buixaderas E., Gregora I., Hlinka J. et al. Raman and IR phonons in ferroelectric $\text{Sr}_{0.35}\text{Ba}_{0.69}\text{Nb}_2\text{O}_{6.04}$ single crystals // *Phase Transit.* 2013. **86**, Is. 2–3. P. 217–229.
8. Buixaderas E., Savinov V., Kempa M. et al. Infrared and dielectric spectroscopy of the relaxor ferroelectric $\text{Sr}_{0.61}\text{Ba}_{0.39}\text{Nb}_2\text{O}_6$ // *Journ. Phys. Condens. Matter.* 2005. **17**, Is. 4. P. 653–666.
9. Иванов С. Д., Косцов Э. Г. Тепловые приёмники неохлаждаемых многоэлементных тепловизионных матриц. Ч. II. Новые, нетеплоизолированные элементы // *Автометрия*. 2016. **52**, № 1. С. 104–115.