

VILNIAUS UNIVERSITETAS  
FIZINIŲ IR TECHNOLOGIJOS MOKSLŲ CENTRAS

RŪTA MACKEVIČIŪTĖ

PLONŲ FEROELEKTRINIŲ SLUOKSNIŲ IR NANODARINIŲ ELEKTRINIŲ  
SAVYBIŲ TYRIMAI

Daktaro disertacijos santrauka

Fiziniai mokslai, Fizika (02P)

Vilnius, 2017

Disertacija rengta 2013 – 2017 metais Vilniaus universitete.

Mokslinis vadovas – prof. dr. Robertas Grigalaitis (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P).

Disertacija ginama viešame Gynimo tarybos posėdyje:

Pirmininkas – doc. dr. Bonifacas Vengalis (Fizinių ir technologinių mokslų centras, fiziniai mokslai, fizika – 02P).

Nariai:

doc. Valdemaras Aleksa (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P);

Dr. Polina Kuzhir (Baltarusijos universiteto Branduolinių tyrimų institutas, Baltarusija, fiziniai mokslai, fizika – 02P);

prof. habil. dr. Antanas Feliksas Orliukas (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P);

doc. Tomas Šalkus (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P).

Disertacija bus ginama viešame Gynimo tarybos posėdyje 2017 m. rugsėjo mėn. 28 d. 15:00 val. Fizinių ir technologijos mokslų centre B336 kabinete.

Adresas: Saulėtekio al. 5, Vilnius, Lietuva.

Disertacijos santrauka išsiuntinėta 2017 m. rugpjūčio mėn. 28 d.

Disertaciją galima peržiūrėti Vilniaus universiteto, Fizinių ir technologijų mokslų centro bibliotekose ir Vilniaus universiteto interneto svetainėje [www.vu.lt/lt/naujienos/ivykiu-kalendorius](http://www.vu.lt/lt/naujienos/ivykiu-kalendorius).

## Turinys

1. Įvadas .....	5
1.1. Darbo tikslas ir uždaviniai .....	5
1.2. Mokslinis naujumas .....	6
1.3. Ginamieji teiginiai.....	6
1.4. Autorės indėlis .....	7
1.5. Disertacijos struktūra .....	7
1.6. Disertacijos tema paskelbti straipsniai.....	8
1.7. Disertacijos rezultatai, aprobuoti mokslinėse konferencijose.....	8
2. Apžvalga .....	11
6.1. Kristalų struktūrinė simetrija .....	11
6.2. Feroelektrikai .....	11
2.3. Feroelektriniai relaksoriai .....	14
2.4. Ploni feroelektriniai sluoksniai .....	15
3. Matavimų ir skaičiavimų metodikos.....	16
3.1. Kristalų ir plonų sluoksnių dielektrinės, bei impedansų spektroskopijos eksperimentiniai metodai.....	16
3.2. Dielektrinių ir impedanso spektrų teoriniai charakterizavimo modeliai .....	17
3.3. Poliniuose dielektrikuose stebimos dielektrinės skvarbos priklausomybė nuo dc elektrinio lauko .....	18
3.4. Impedanso spektrų analizavimo modeliai naudojami ploniems sluoksniams charakterizuoti .....	18
4. Rezultatai ir jų aptarimas .....	21
4.1. Teorinis plonų dielektrinių sluoksnių, kuriuose ryškus apatinio elektrodo varžos pasiskirstymas, modelis .....	21
4.1.1. Teorinio modelio eksperimentinis įvertinimas .....	25
4.1.2. Santrauka .....	27

4.2. Plonų sluoksnių matavimo rezultatai: bario stroncio titanatas .....	27
4.2.1. $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3 / La_{0.8}Sr_{0.2}MnO_3 // SrTiO_3$ heterostruktūros kompleksinio impedanso spektroskopija.....	28
4.2.2. $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3 / SrRuO_3 // SrTiO_3$ heterostruktūros kompleksinio impedanso spektroskopija.....	32
4.2.3. Santrauka .....	38
4.3. Plonų sluoksnių ir kristalų matavimo rezultatai: švino mangano niobatas – švino titanatas .....	39
4.3.1. $0.71Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-0.29PbTiO_3$ monokristalo dielektriniai ir piroelektriniai tyrimai	40
4.3.2. $0.67Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-0.33PbTiO_3$ plono sluoksniu kompleksinio impedanso tyrimai	43
4.4.3. Santrauka .....	50
5. Išvados .....	51
6. Literatūra.....	52
7. Rūtos Mackevičiūtės trumpas gyvenimo aprašymas .....	56

# 1. Įvadas

Pastaruoju metu plačiai naudojamų feroelektrikų tyrinėjimai prasidėjo atradus feroelektros reiškinių segneto Kalio-natrio tatrato tetrahidrate (angl. Rochelle druskoje), t.y. nuo 1920 metų. Savaiminės poliarizacijos atsiradimas tam tikroje temperatūroje, kurios (poliarizacijos) kryptis gali būti keičiama išoriniu elektriniu lauku laikoma viena pagrindinių feroelektrikų savybe. Feroelektrikai ir panašios medžiagos, tokios kaip feroelektriniai relaksoriai, yra plačiai tyrinėjamos medžiagų klasės mokslinė ir inžinerinė prasme. Tiek tūrinėse, tiek mažų matmenų medžiagose vyksta daug įvairių procesų, tokių kaip domenų sienelių ir įtempimų formavimasis, mechaniniai įtempimai, sandūrų efektai yra tik kelios iš įdomiausių temų. Tuo tarpu, kalbant inžineriniu požiūriu, feroelektrikai yra patrauklūs dėl aukštos dielektrinės skvarbos, mažų dielektrinių nuostolių, gero šiluminio stabilumo, bei stabilios aukštadažnės charakteristikos. Šios savybės leidžia gaminti didelio tankio dinaminės atminties elementus, infraraudonųjų spindulių jutiklius, drėgmės ir dujų jutiklius, bei kitus įtaisus. Svarbu pastebėti, kad šiuolaikinės technologijos vystosi įtaisų matmenų mažėjimo kryptimi, todėl labai svarbu suprasti, kaip pakinta feroelektrinės medžiagų savybės nanoskopinių matmenų atveju.

## 1.1. Darbo tikslas ir uždaviniai

Pagrindinis šio darbo tikslas yra ištirti epitaksinių  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ ,  $0.67Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - 0.33PbTiO_3$  plonasluoksnių heterostruktūrų, bei  $0.71Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - 0.29PbTiO_3$  kristalų elektrines savybes plačiame temperatūrų ir dažnių intervale.

Darbo uždaviniai:

1. Ištirti sudėtingas plonasluoksnes heterosandūras, kurios pasižymi laidžiu funkciniu sluoksniu ir žemomis laidaus sluoksnio savybėmis.
2. Eksperimentiškai ištirti  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  pasireškiančių dėl tiriamo sluoksnio gardelės nesutapimo su padėklo gardele atsiradusių įtempimų įtaką fazinio virsmo temperatūrai, dielektrinėms savybėms ir valdomumui elektriniu lauku.
3. Ištirti  $0.71Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - 0.29PbTiO_3$  kristalų ir epitaksinių  $0.67Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - 0.33PbTiO_3$  plonų sluoksnių dielektrines savybes.

Visais atvejais, tyrimai atlikti naudojant plačiajuostės dielektrinės spektroskopijos metodus.

## 1.2. Mokslinis naujumas

1. Teorinis plonų dielektrinių sluoksnių modelis, kuriuose ryškus apatinio elektrodo varžos pasiskirstymas, buvo sukurtas ir patikrintas su plonasluoksnėmis heterostrukūromis. Pastebėta, jog šį teorinį modelį galima pritaikyti sistemoms, kuriose plono sluoksnio kompleksinio impedanso dispersija yra persiklojusi su laidaus sluoksnio impedanso dispersija.
2. Pristatytas ir patvirtintas aprašyto teorinio modelio efektyvumas analizuojant epitaksinio  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  plonojo sluoksnio eksperimentinius rezultatus. Parodyta, jog fizikiniu požiūriu teorinis plonų dielektrinių sluoksnių modelis, kuriame stebimas apatinio elektrodo varžos pasiskirstymas, koreliuoja su eksperimentinius rezultatus, skirtingai negu ekvivalentinių grandinių modelis.
3. Epitaksinio  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  plono sluoksnio savybės ištirtos 20 Hz – 1 MHz dažnių, 300 – 500 K temperatūrų ir -1 MV/cm – 1 MV/cm elektrinių laukų intervaluose.
4. Piroelektrinės  $0.71\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - 0.29\text{PbTiO}_3$  kristalo, orientuoto ir poliarizuoto trimis skirtingomis kristalografinėmis kryptimis:  $\langle 001 \rangle$ ,  $\langle 011 \rangle$  ir  $\langle 111 \rangle$ , savybės ištirtos 220 – 420 K temperatūrų ruože.
5. Epitaksinio  $0.67\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - 0.33\text{PbTiO}_3$  plono sluoksnio specifinė varža ir elektrinio atsako valdomumas DC lauku ištirtas 20 Hz – 1 MHz dažnių, 300 – 500 K temperatūrų ir -100 kV/cm – 100 kV/cm elektrinių laukų intervaluose.

## 1.3. Ginamieji teiginiai

1. Plonų dielektrinių sluoksnių modelis, kuriuose ryškus apatinio elektrodo varžos pasiskirstymas, fizikiniu požiūriu teisingai aprašo sudėtingas epitaksines heterostrukūras.
2. Dielektrinės skvarbos vertės  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  ir  $0.67\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - 0.33\text{PbTiO}_3$  epitaksiniuose plonuose sluoksniuose, sumažėja lyginant su jų vertėmis tūrinėse medžiagose.

3. Įrašytas elektrinis laukas ir laukas, atsiradęs dėl vidinių gardelės įtempimų, nepablogina epitaksinių  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  ir  $0.67Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - 0.33PbTiO_3$  plonų sluoksnių dielektrinės skvarbos valdomumo elektriniu lauku.

#### 1.4. Autorės indėlis

Disertacijos autorė atliko impedancų ir dielektrinės spektroskopijos, plonų sluoksnių elektrinio atsako valdomumu elektriniu lauku, feroelektrinės histerezės ir piroelektrinio koeficiento matavimus. Ji taip pat analizavo eksperimentinius rezultatus bei rengė daugumos straipsnių rankraščius. Autorė rengė pranešimus konferencijoms bei daugumą jų pristatė pati.

Dalis rezultatų gauti bendradarbiaujant su autoriais iš kitų institucijų.  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  heterostruktūrų gamyba buvo atlikta Loanos politechnikos institute (Šveicarijoje).  $0.67Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - 0.33PbTiO_3$  heterostruktūrų gamybą atliko kolegą iš Tventės universiteto (Olandija). Tuo tarpu  $0.71Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - 0.29PbTiO_3$  monokristalai pirkti iš H.C. Materials Corporation (JAV). Rentgeno spindulių difrakcijos ir pjiezo jėgos mikroskopijos matavimai buvo atlikti Loanos politechnikos institute (Šveicarijoje).

#### 1.5. Disertacijos struktūra

Disertacija sudaryta iš 5 skyrių. Darbe yra 119 puslapiai, 2 lentelės, 54 paveikslai ir 118 cituotų literatūros šaltinių.

**Pirmasis skyrius** – įvadas, jame pateikiami darbo tikslai ir uždaviniai, mokslinis naujumas, ginamieji teiginiai, autorės indėlis, publikacijų ir pranešimų konferencijose sąrašai. **Antrajame skyriuje** yra apžvelgta literatūra disertacijos tema – kristalų struktūrinė simetrija, kas yra feroelektrikai ir feroelektriniai relaksoriai, domenų ir domenų sienelių relaksacija, feroelektriniai ploni sluoksniai ir jų savybės. Eksperimentiniai dielektrinės spektroskopijos metodai, bei teoriniai dielektrinių ir impedanso spektrų modeliai apžvelgti **trečiajame skyriuje**. **Ketvirtajame skyriuje** pateiktas doktorantūros metu išvestas teorinis plonų dielektrinių sluoksnių modelis, kuriame ryškus apatinio elektrodo varžos pasiskirstymas ir pristatyti gauti eksperimentiniai epitaksinių  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  ir  $0.67Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - 0.33PbTiO_3$  plonų

sluoksnių ir  $0.71\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - 0.29\text{PbTiO}_3$  kristalų rezultatai. **Penktajame** skyriuje pateiktos disertacijos išvados. Cituotos literatūros sąrašas yra pateikiamas kiekvieno skyriaus pabaigoje.

Toliau yra pateikiamos svarbiausios disertacijos dalys pradedant antruoju skyriumi. Pirmojo disertacijos skyriaus turinys atspindimas pirmajame šios santraukos skyriuje.

### **1.6. Disertacijos tema paskelbti straipsniai**

1. **R. Mackeviciute, R. Grigalaitis, M. Ivanov, R. Sliteris, and J. Banys**, Dielectric and Pyroelectric Properties of PMN-29PT Single Crystals Near MPB. *Ferroelectrics*, 479, 1–6 (2015): <http://dx.doi.org/10.1080/00150193.2015.1008382>
2. **R. Mackevičiūtė, M. Ivanov, Š. Bagdzevičius, R. Grigalaitis, J. Banys**, Electrical model of a thin dielectric film with a bottom electrode of non-negligible distributed resistance. *Ferroelectrics*, 497, 114–125 (2016): <http://dx.doi.org/10.1080/00150193.2016.1165023>
3. **S. Bagdzevicius, R. Mackeviciute, M. Ivanov, B. Fraygola, C. S. Sandu, N. Setter, and J. Banys**, Internal electrical and strain fields influence on the electrical tunability of epitaxial  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  thin films. *Appl. Phys. Lett.* 108, 132901 (2016): <http://dx.doi.org/10.1063/1.4944997>
4. **R. Mackevičiūtė, Š. Bagdzevičius, M. Ivanov, B. Fraygola, R. Grigalaitis, N. Setter, and J. Banys**, Strain engineering of electrical conductivity in epitaxial thin  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  film heterostructures. *Lith. J. Phys.* 56, 173–181 (2016): <http://dx.doi.org/10.3952/physics.v56i3.3366>
5. **R. Mackeviciute, R. Grigalaitis, J. Banys, M. Boota, A. Ghosh, and G. Rijnders**, Electrical properties of PMN-33PT thin film at MPB. Submitted in *Ferroelectric*: <http://dx.doi.org/10.1080/00150193.2017.1355140>

### **1.7. Disertacijos rezultatai, aprobuoti mokslinėse konferencijose**

1. **R. Mackeviciute, J. Banys, P. Szklarz**. „Dielectric properties of diammonium hypodiphosphate  $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{P}_2\text{O}_6$  (ADhP)“, European Conference on Application of Polar Dielectrics 2014 (ECAPD), Vilnius, Lietuva, 07 – 11 of June 2014



2. **R. Mackeviciute**, R. Grigalaitis, M. Ivanov, R. Sliteris, J. Banys. „Dielectric and pyroelectric properties of PMN-29PT single crystal near MPB”, European Conference on Application of Polar Dielectrics 2014 (ECAPD), Vilnius, Lietuva, 07 – 11 of June 2014
3. **R. Mackeviciute**, J. Banys, P. Szklarz, „Dielectric properties of diammonium hypodiphosphate  $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{P}_2\text{O}_6$  (ADhP)“, III Polish-Lithuanian-Ukrainian Meeting on Ferroelectrics Physics (PLU 2014), Wroclaw – Pawlowice, Poland, 31 of August – 04 of September 2014
4. **R. Mackeviciute**, R. Grigalaitis, M. Ivanov, R. Sliteris, J. Banys „Dielectric and pyroelectric properties of PMN-29PT single crystal near MPB”, III Polish-Lithuanian-Ukrainian Meeting on Ferroelectrics Physics (PLU 2014), Wroclaw – Pawlowice, Poland, 31 of August – 04 of September 2014
5. **R. Mackeviciute**, J. Banys, P. Szklarz, „Dielectric properties of diammonium hypodiphosphate  $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{P}_2\text{O}_6$  (ADhP)“, Russia/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity – 2014 – Functional Materials and Nanotechnologies (RCBJSF – 2014 – FM&NT), Riga, Latvia, 29 of September – 02 of October 2014
6. S. Bagdzevicius, R. Mackeviciute, N. Setter, J. Banys, "Structural and Electrical Characterization of Epitaxially Strained  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$ ", Russia/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity – 2014 – Functional Materials and Nanotechnologies (RCBJSF – 2014 – FM&NT), Riga, Latvia, 29 of September – 02 of October 2014
7. **R. Mackevičiūtė**, Š. Bagdzevičius, M. Ivanov, R. Grigalaitis, and J. Banys, „Complex impedance spectroscopy of  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  thin films“, 13th European Meeting on Ferroelectricity (EMF 2015), Porto, Portugal, 28 of June – 03 of July 2015
8. **R. Mackevičiūtė**, Š. Bagdzevičius, M. Ivanov, R. Grigalaitis, and J. Banys, „Complex impedance spectroscopy of  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  thin films“, International School of Oxide Electronics 2015, Cargèse, Corsica (France), 12 – 24 of October 2015
9. **R. Mackeviciute**, R. Grigalaitis, J. Banys, M. Boota, A. Ghosh, and G. Rijnders, "Electrical properties of  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ -33 $\text{PbTiO}_3$  thin film at MPB", 13<sup>th</sup> Russia/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity nad 8<sup>th</sup> International Workshop on Relaxor Ferroelectrics (Joint RCBJSF-IWRF 2016 Conference), Shimane, Japan, 19 – 23 of June 2016

10. R. Mackevičiūtė, R. Grigalaitis, Š. Bagdzevičius, M. Ivanov, B. Fraygola, N. Setter, J. Banys, "Electrical conductivity studies in partially strained epitaxial thin  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  films", 13<sup>th</sup> Russia/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity nad 8<sup>th</sup> International Workshop on Relaxor Ferroelectrics (Joint RCBJSF-IWRF 2016 Conference), Shimane, Japan, 19 – 23 of June 2016

## 2. Apžvalga

### 6.1. Kristalų struktūrinė simetrija

Paprastai kristalai apibūdinami pagal kristalų simetrijos grupes, t.y. erdvines grupes arba pagal vienetinės gardelės simetriją. Taigi, gyvojoje gamtoje egzistuoja 32 makroskopinės simetrijos tipai (taškinės grupės arba kristalinės klasės) iš kurių 11 turi simetrijos centrą. Iš likusių 21-os necentrosimetrinės kristalų klasės, visos, išskyrus vieną, dėl mechaninių įtempimų, poliarizuojasi. Šis efektas yra vadinamas pjezoelektriniu efektu. Pusė iš 20-ties pjezoelektrinių kristalų klasių turi unikalią polinę ašį. Kristalai, priklausantys šiai klasei yra vadinami poliniais. Poliniai kristalai kitaip dar vadinami piroelektrikais, nes juose stebima spontaninė poliarizacija priklauso nuo temperatūros. Dalis piroelektrikų taip pat yra ir feroelektrikai, kuriuose spontaninės poliarizacijos kryptis gali būti keičiama nuo išorinio elektrinio lauko.

### 6.2. Feroelektrikai

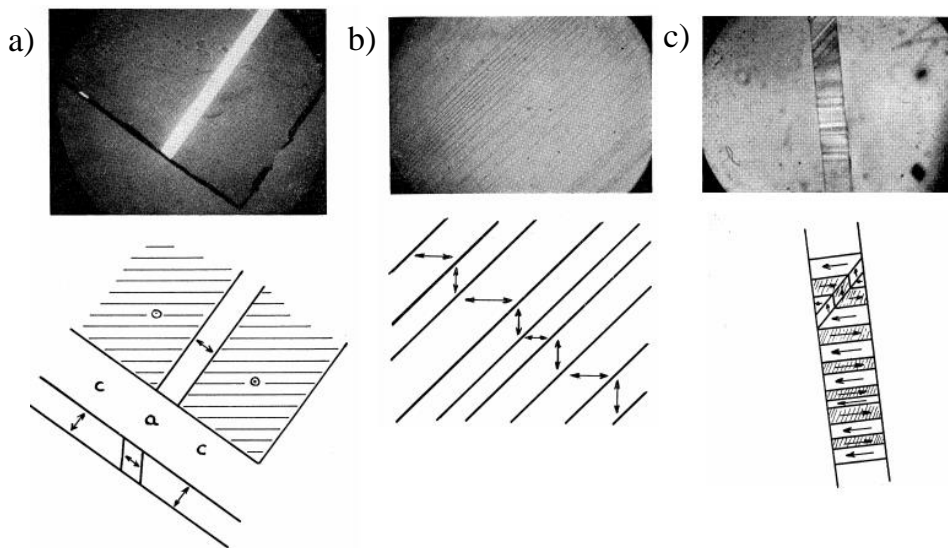
Feroelektrikais vadinamos savaime poliarizuotos medžiagos, kurių poliarizaciją galima valdyti išoriniu elektriniu lauku. Paprastai yra tikimasi, kad medžiaga yra vienodai poliarizuota visame tūryje, tačiau tai energetiškai nenaudinga baigtinio dydžio kristaluose. Dėl šios priežasties susiformuoja domenai, t.y. vienodos poliarizacijos sritys. Pirmą kartą teoriškai šis efektas buvo aprašytas Kittel'io [1]. Domenai sudaro tam tikrą struktūrą. Plokštelių atveju tai yra periodiškai išsidėsčiusios juostelės. Kadangi įtempimai ties domenų sienelėmis lemia jų aukštą potencinę energiją, egzistuoja tam tikras optimalus domenų plotis:

$$D = \sqrt{\frac{\sigma}{U}} d, \quad (1)$$

čia:  $D$  yra domeno plotis,  $\sigma$  yra domenų sienelių energijos tankis (ploto vienetui),  $U$  yra domeno energijos tankis (tūrio vienetui),  $d$  yra plokštelės storis.

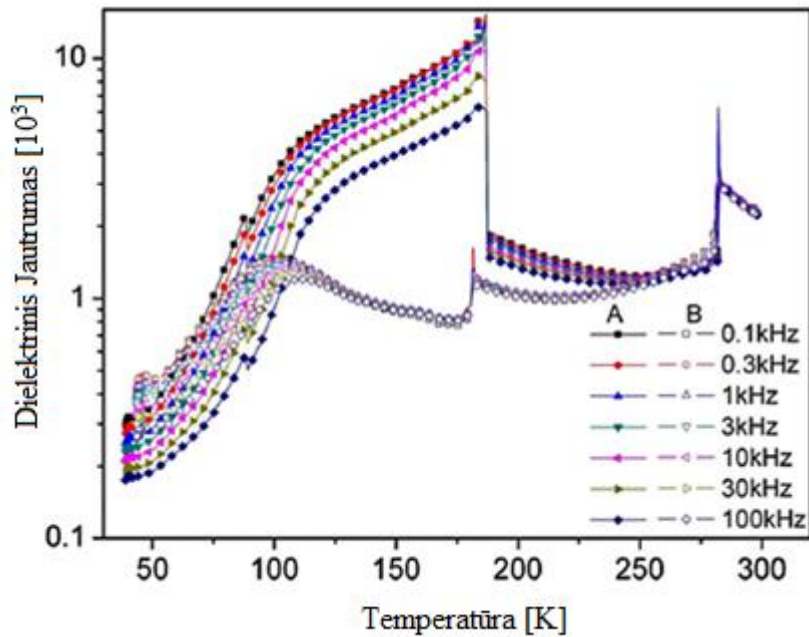
Mažų kintamų elektrinių laukų atveju domenai keis savo matmenis siekiant sumažinti suminę sistemos energiją. Šis procesas dažnai vadinamas domenų sienelių judėjimu. 1954 metais Walter J. Merz vienas pirmųjų stebėjo domenų sienelių judėjimą

bario titanato kristaluose [2]. Atliekant optinius tyrinėjimus buvo išskirti trys domenų sienelių tipai, kurie pavaizduoti 1 paveikslėlyje.



1 pav. Nuotraukos ir schematinė domenų sienelių tipų, stebėtų Walter J. Merz 1954 metais BaTiO<sub>3</sub> kristaluose, iliustracija: a) 90° laipsnių sienelė tarp *a* domeno ir dviejų *c* domenų, b) 90° laipsnių sienelė tarp *a* domenų ir c) 180° laipsnių sienelė (antilygiagretūs domenai) kristalo krašte [2].

Pirmasis – tai riba tarp domenų, kai viename domene visi dipoliai sulygiuoti statmenai kristalui (*c* domenai), o kitame domene visi dipoliai sulygiuoti lygiagrečiai kristalo plokštelių (*a* domenai). Ši domenų sienelių sandūra vadinama 90° sienele, nes du domenai yra poliarizuoti 90° kampu vienas kito atžvilgiu. Antruoju atveju, domenų sienelių riba taip pat yra 90°, tačiau poliarizacija abiejose sienelės pusėse yra lygiagreti kristalo paviršiui (*a* domenai). Trečio tipo domenų sienelių sandūra yra 180° laipsnių: šiuo atveju domenuose, sudarančiuose sienelių ribą, poliarizacija yra lygiagreti viena kitai, tačiau priešingų kryptių. Visuose šiuose pavyzdžiuose, domenai orientuojasi taip, jog nesusidarytų paviršiniai krūviai esant 90° sienelei: zigzaginiis poliarizacijos krypties išsidėstymas. Domenų sienelių judėjimą sukelia prijungtas išorinis elektrinis laukas. Šią domenų sienelių savybę tyrinėjo Walter J. Merz 1952 metais [3]. Taigi, domenų sienelių judėjimas keičia suminę kristalo poliarizaciją ir toks pokytis gali būti siejamas su dielektrine skvarba. Tai reiškia, kad domenų sienelės duoda indėlį į suminę dielektrinę skvarbą.

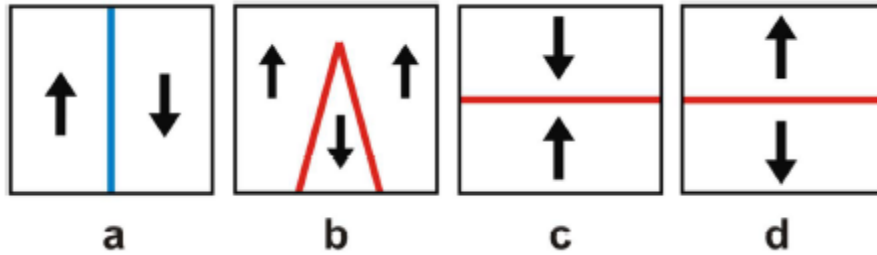


2 pav.  $\langle 111 \rangle$  kryptimi orientuoto  $\text{BaTiO}_3$  kristalo dielektrinės skvarbos priklausomybė nuo temperatūros [4].

Wang’as ir kiti [4] stebėjo domenų sienelių indėlį į suminę dielektrinę skvarbą ir gauti rezultatai pavaizduoti 2 paveikslėlyje

Taigi, domenų sienelių indėlis į suminę dielektrinę skvarbą asocijuojasi su dideliu atomų kiekiu, kas yra reliatyviai lėtas procesas. Jonų indėlis į dielektrinę skvarbą stebimas ties charakteringu dažniu, kuris paprastai yra THz arba tolimajame infraraudonųjų spindulių srityje. Tuo tarpu domenų charakteringasis dažnis yra radio- ir mikrobangų srityje.

Kaip buvo aprašyta aukščiau, feroelektrikai susideda iš domenų, kurie yra spontaniškai poliarizuoti simetrijos leidžiama kryptimi. Du gretimi domenai atskirti homogeniška sritimi. Šios sritys paprastai tenkina elektrostatinio suderinamumo sąlygą, t.y. spontaninės poliarizacijos normalinė komponentė yra tęstinė visoje srityje [5], kuri neturi krūvio ir vadinama neutralia domenų sienele (NDS).



3 pav. Neutralių ir  $180^\circ$  įkraudų domenų sienelių schematinė iliustracija. a) Neutrali domenų sienelė. b) Dalinai įkraudų domenų sienelių pavyzdys. c) Įkrautos domenų sienelės, „priekis į priekį“ konfigūracija ir d) „uodega į uodegą“ konfigūracija [5].

Tačiau egzistuoja sritys, kurios turi krūvį, dėl poliarizacijos šuolinio pasikeitimo ties sienelės riba. Tokiose srityse sulaužoma elektrostatinio suderinamumo sąlyga ir šios sritys vadinamos įkrautomis domenų sienelėmis (IDS). 3 paveikslėlyje parodytas  $180^\circ$  NDS pavyzdys (3a)) ir IDS (3b) – d)).

### 2.3. Feroelektriniai relaksoriai

Feroelektriniai relaksoriai yra netvarkių kristalų grupė, pasižyminti tam tikromis savybėmis. Aukštoje temperatūroje jie yra paraelektrinėje fazėje, kuri panaši į įprastų feroelektrikų paraelektrinę fazę. Mažinant temperatūrą juose pradeda formuotis polinės sritys, kurių dydis yra nanoskopinis, o poliarizacijos kryptis yra atsitiktinė. Formavimasis prasideda taip vadinamojoje Burns temperatūroje [6], kuri negali būti siejama su tikru faziniu virsmu, nes nevyksta jokie struktūros pokyčiai makroskopiniame mastelyje. Nepaisant to, polinės nanosritys stipriai paveikia kristalo fizikines savybes. Šaldant jų dinamika lėtėja ir užšąla tam tikroje (užšalimo) temperatūroje  $T_f$ , tačiau vidutinė simetrija lieka kubinė. Kompozicinė netvarka, t.y. atsitiktinis skirtingų jonų išsidėstymas kristalografiškai ekvivalentčiose vietose yra bendra relaksorių savybė. Pirmi atrasti relaksoriai turi cheminę netvarką tarp nevienodo valentingumo jonų, pvz.  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  (PMN) [7],  $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$  (PST) [8],  $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$  (PSN),  $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  (PZN).

Vogel'io ir Fulcher'io dėsnis dažnai aprašo relaksorių relaksacijos trukmę [9]:

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E_a}{k_B(T - T_{VF})}\right), \quad (2)$$

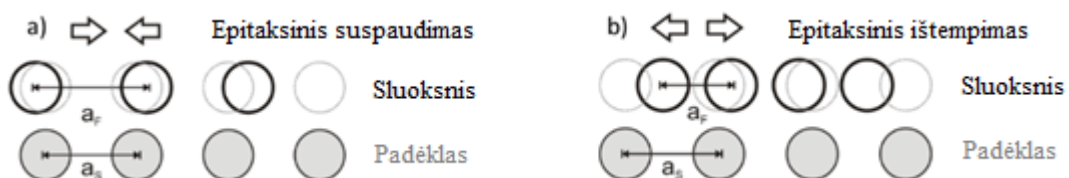
čia:  $\tau_0$  yra relaksacijos trukmė aukštoje temperatūroje,  $E_a$  – aktyvacijos energija,  $T_{VF}$  – užšalimo temperatūra,  $k_B$  – Boltzmann konstanta.

## 2.4. Ploni feroelektriniai sluoksniai

Kaip buvo minėta anksčiau, feroelektrikai yra svarbūs ne vien fundamentiniu, tačiau ir inžineriniu požiūriu. Keletą pastarųjų metų feroelektrikai, plonų sluoksnių formoje, naudojami įtaisuose, veikiančiuose radio dažniuose. Komponentai, kurie pagaminti plonų feroinių sluoksnių pagrindu taip pat naudojami įvairiuose jutikliuose, aktuatoriuose, bei valdomose mikrobangų grandinėse. Bendrąja prasme, sluoksnius galima skirstyti į plonus sluoksnius, kai sluoksnio storis yra nuo 4 iki 100 nm (nuo 10 iki 250 vienetinių gardelių) ir į storus sluoksnius, kai storis yra lygus arba didesnis už 100 nm. Pagrindinis pliusas naudojant plonus feroelektrinius sluoksnius yra tai, jog atsiranda tam tikri įtempimai tarp kristalinės padėklo gardelės ir kristalinės sluoksnio gardelės. Atsiradę įtempimai pasižymi svarbiomis fundamentinėmis savybėmis. Padėklo ir sluoksnio kristalinių gardelių nesutapimai yra žinomi kaip plokštumoje stebimi elastiniai įtempimai ir matematiškai išreiškiami taip:

$$e_m(T) = \frac{a_s(T) - a_f(T)}{a_f(T)}, \quad (3)$$

čia:  $e_m(T)$  – įtempimai atsiradę dėl gardelių nesutapimo,  $a_s(T)$  ir  $a_f(T)$  yra nuo temperatūros priklausantys padėklo ir sluoksnio gardelių parametrai.



4 pav. Schematinė epitaksinio gniuždymo ir tempimo įtempimų iliustracija.

Apskritai, egzistuoja du įtempimų tipai, atsiradę dėl gardelių nesutapimo: įtempimas dėl epitaksinio gniuždymo ir įtempimas dėl epitaksinio tempimo. Abu šie pavyzdžiai pateikti 4 paveikslėlyje.

### 3. Matavimų ir skaičiavimų metodikos

#### 3.1. Kristalų ir plonų sluoksnių dielektrinės, bei impedansų spektroskopijos eksperimentiniai metodai

Eksperimentiniai tyrimai buvo atliekami naudojant Hewlett Packard 4284A LCR matuoklį 20 Hz – 1 MHz dažnių intervale. Buvo matuojama talpa ( $C_c$ ) ir nuostolių tangentas ( $\text{tg}\delta = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'}$ ), atliekant dielektrinius tyrimus. Tuo tarpu impedansų spektroskopijoje buvo matuojama kompleksinio impedanso varža ( $R$ ) ir reaktyvioji varža ( $X$ ). Siekiant užtikrinti gerą elektrinį laidumą, buvo naudojama sidabro pasta, bei kai kuriais atvejais indžio alavo oksidas ir sidabro pasta.

Dielektrinė skvarba apskaičiuota naudojant plokščio kondensatoriaus modelį [10]:

$$\varepsilon' = \frac{(C_m - C_0)d}{\varepsilon_0 S} + 1, \quad (4)$$
$$\varepsilon'' = \varepsilon' \text{tg}\delta = \frac{C_m \text{tg}\delta_m - C_0 \text{tg}\delta_0}{C_m - C_0},$$

čia:  $C_m$  ir  $\text{tg}\delta_m$  yra sistemos su bandiniu atitinkamai talpa ir nuostolių tangentas,  $C_0$  ir  $\text{tg}\delta_0$  – tuščios sistemos talpa ir nuostolių tangentas,  $\varepsilon_0$  – elektrinė konstanta,  $d$  ir  $S$  – bandinio aukštis bei kontakto plotas.

Kompleksinę specifinę varžą galima apskaičiuoti naudojant šią išraišką:

$$\rho^* = Z^* \frac{S}{d}, \quad (5)$$

čia:  $Z^*$  yra kompleksinis impedansas ( $Z^* = R - jX$ ),  $d$  ir  $S$  – bandinio aukštis bei kontakto plotas. Norint gauti kompleksinės dielektrinės skvarbos išraišką naudojant specifinę varžą, reikia atlikti keletą matematinių žingsnių. Taip pat reikia atsižvelgti į kompleksinio laidumo išraišką:

$$\sigma^* = \sigma' + j\sigma'' = j\varepsilon_0 \omega \varepsilon^*, \quad (6)$$

čia:  $\sigma'$  ir  $\sigma''$  yra laidumo realioji ir menamoji dalys,  $\omega$  – ciklinis dažnis ir  $\varepsilon^*$  yra kompleksinė dielektrinė skvarba.

Kompleksinį laidumą galima išreikšti ir kitaip – per kompleksinę specifinę varžą:

$$\sigma^* = \frac{\rho^*}{|\rho^*|^2}. \quad (7)$$



Taigi, atsižvelgiant į pastarąsias išraiškas, kompleksinę dielektrinę skvarbą galima užrašyti taip:

$$\varepsilon^* = \frac{1}{j\omega\varepsilon_0} \cdot \frac{\rho^*}{|\rho^*|^2}. \quad (8)$$

Tuo tarpu plonų sluoksnių charakterizavimo įranga - TF Analyser 2000 (aixACCT) buvo naudojama matuojant feroelektrinės histerezės kilpas, plonų sluoksnių elektrinio atsako valdomumą elektriniu lauku, bei piroelektrinį efektą. Piroelektrinis koeficientas buvo perskaičiuojamas atsižvelgiant į išraišką:

$$p \approx \frac{1}{A} \frac{I\Delta t}{\Delta T}, \quad (9)$$

čia:  $I$  yra piroelektrinė srovė,  $A$  – bandinio plotas ir  $\frac{\Delta T}{\Delta t}$  yra temperatūros kitimo greitis.

### 3.2. Dielektrinių ir impedanso spektrų teoriniai charakterizavimo modeliai

Feroelektrinės netvarkios medžiagos paprastai pasižymi plačia dielektrinės skvarbos dispersija. Paprasčiausias būdas aprašyti dielektrinius spektrus yra naudojant Debye formulę [11]:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\Delta\varepsilon}{1 + i\omega\tau}, \quad (10)$$

čia:  $\varepsilon_\infty$  yra aukštadažnė dielektrinė skvarba,  $\Delta\varepsilon$  – relaksacijos stipris,  $\omega$  – ciklinis dažnis ir  $\tau$  – relaksacijos trukmė.

Debye formulė dažnai netinkama aprašant dielektrinius spektrus. Taip yra todėl, kad medžiagos poliarizacija yra superpozicija daugelio elementarių poliarizacijos reiškinių. Tokiu atveju galima naudoti Cole – Cole (11 lygtis), Cole – Davidson (12 lygtis) ar Havriliak – Negami (13 lygtis) formules [12], [13] ir [14, 15] atitinkamai:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\Delta\varepsilon}{1 + (i\omega\tau_{cc})^{1-\alpha_{cc}}}, \quad (11)$$

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\Delta\varepsilon}{(1 + i\omega\tau_{cd})^\beta}, \quad (12)$$

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\Delta\varepsilon}{(1 + (i\omega\tau_{HN})^{1-\alpha_{cc}})^\beta}. \quad (13)$$

Šiose formulėse, parametrai  $\alpha_{CC}$  arba  $\alpha_{HN}$  aprašo spektro plotį,  $\beta$  – spektro asimetriškumą apibūdinantis dydis,  $\tau_{CC}$ ,  $\tau_{HN}$  arba  $\tau_{CD}$  yra relaksacijos trukmės.

Vidutinės relaksacijos trukmės temperatūrinę priklausomybę galima aprašyti Arrhenius (14 lygtis) arba Vogel Fulcher (2 lygtis) dėsniais:

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E_a}{k_B T}\right), \quad (14)$$

čia:  $\tau_0$  yra relaksacijos trukmė aukštoje temperatūroje,  $E_a$  – aktyvacijos energija,  $k_B$  – Boltzmann konstanta.

### **3.3. Poliniuose dielektrikuose stebimos dielektrinės skvarbos priklausomybė nuo dc elektrinio lauko**

Poliniuose dielektrikuose dielektrinės skvarbos konstanta gali žymiai pakisti, jeigu bus prijungtas išorinis elektrinis laukas ( $E$ ). Dielektrinės skvarbos elgseną, esant prijungtam išoriniam dc elektriniam laukui, galima nagrinėti LGD teorijos rėmuose [16 – 18]. Atsižvelgiant į šią teoriją, Johnson'as pasiūlė supaprastintą matematinę išraišką, kuri vadinama Johnson aproksimacija:

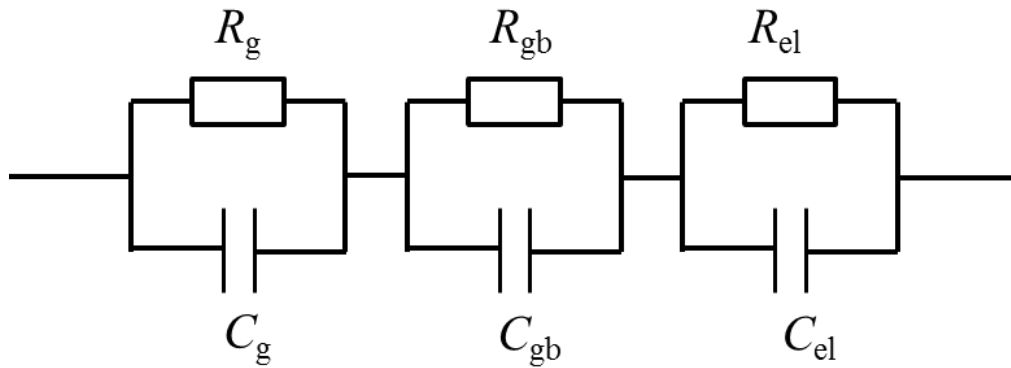
$$\varepsilon_r(E) = \frac{\varepsilon_r(0)}{\{1 + 3\beta[\varepsilon_0 \varepsilon_r(0)]^3 (E)^2\}^{1/3}}, \quad (15)$$

čia:  $\varepsilon_r(0)$  yra dielektrinė skvarba neesant išoriniam elektriniam laukui,  $\beta$  – nuo temperatūros nepriklausantis koeficientas, kuris Johnson empirinėje išraiškoje turi būti didesnis už nulį ( $\beta > 0$ ).

### **3.4. Impedanso spektrų analizavimo modeliai naudojami ploniems sluoksniams charakterizuoti**

Analizuojant impedansų spektrus, galima surasti daugiau negu vieną ekvivalentinę grandinę, kurių matematinės išraiškos gerai aprašys eksperimentinius rezultatus, tačiau tikėtina, jog tik viena išraiška fizikiniu požiūriu teisingai aprašys eksperimentinius rezultatus.

Elektrines savybes, stebimas neepitaksiniuose plonuose sluoksniuose, galima aprašyti impedansų suma, kuri atitinka relaksacinius procesus grūde, grūdo sienelėse ir elektrodo sandūroje su plonu sluoksniu [19]. Tokią sistemą galima traktuoti kaip nuosekliai sujungtų RC elementų grandinę (5 paveikslėlis):



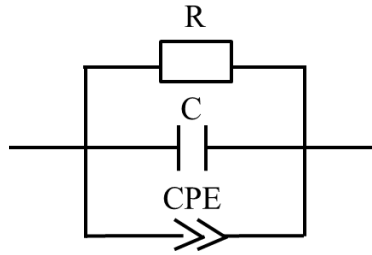
5 pav. Ekvivalentinė grandinė atitinka grūdo, grūdo sienelės ir elektrodo sandūros su plonu sluoksniu elektrines savybes [20].

Idealiu atveju sistemos, pavaizduotos 5 paveikslėlyje, Nyquist diagrama atrodytų kaip pusapskritimiai, kurių centras būtų  $x$ -ašyje. Tačiau realiose matuojamose sistemose, Nyquist diagramą sudaro pusapskritimiai, kurių centras yra žemiau  $x$ -ašies ir tai reiškia jog matuojamos sistemos elektrinio atsako impedansas pasižymi tam tikru pasiskirstymu, t.y. matuojama sistema nėra homogeninė [20]. Siekiant įvertinti sistemos nehomogeniškumą, ekvivalentinėse grandinėse reikia atsižvelgti į pasiskirstymo faktorių  $n$ . Įtraukti pasiskirstymo faktorių galima naudojant pastovios fazės elementą. Taigi, neepitaksinius plonus sluoksnius galima aprašyti ekvivalentine grandine, kurioje įtrauktas pastovios fazės elementas ir matematinė tokios grandinės išraiška yra tokia:

$$Z^*(\omega) = \left( \frac{1}{R_g} + A_g(j\omega)^{n_g} \right)^{-1} + \left( \frac{1}{R_{gb}} + A_{gb}(j\omega)^{n_{gb}} \right)^{-1} + \left( \frac{1}{R_{el}} + A_{el}(j\omega)^{n_{el}} \right)^{-1}, \quad (16)$$

čia:  $R_g$ ,  $R_{gb}$  ir  $R_{el}$  yra grūdo, grūdo sienelės ir elektrodo sandūros su plonu sluoksniu varžos,  $A_g$ ,  $A_{gb}$ ,  $A_{el}$  ir  $n_g$ ,  $n_{gb}$ ,  $n_{el}$  yra eksperimentinės vertės,  $\omega$  – ciklinis dažnis.

Tuo tarpu nagrinėjant epitaksinius plonus sluoksnius, pastovios fazės elementas taip pat yra įskaitomas. Šiuo atveju matuojamą sistemą aprašančią ekvivalentinę grandinę galima atvaizduoti kaip lygiagrečiai sujungtą varžą ( $R$ ), talpą ( $C$ ) ir pastovios fazės elementą, kuris parodo nuokrypį nuo idealios Debye tipo sistemos (6 paveikslėlis):



6 pav. Ekvivalentinė grandinė atitinkanti epitaksiniuose plonuose sluoksniuose stebimus procesus. Šią ekvivalentinę grandinę pasiūlė *Tang 'as ir kiti* [21].

Šią grandinę aprašanti matematinė išraiška:

$$Z^* = Z' - jZ'' = \frac{1}{R^{-1} + j\omega C + A_0(j\omega)^n} \quad (17)$$

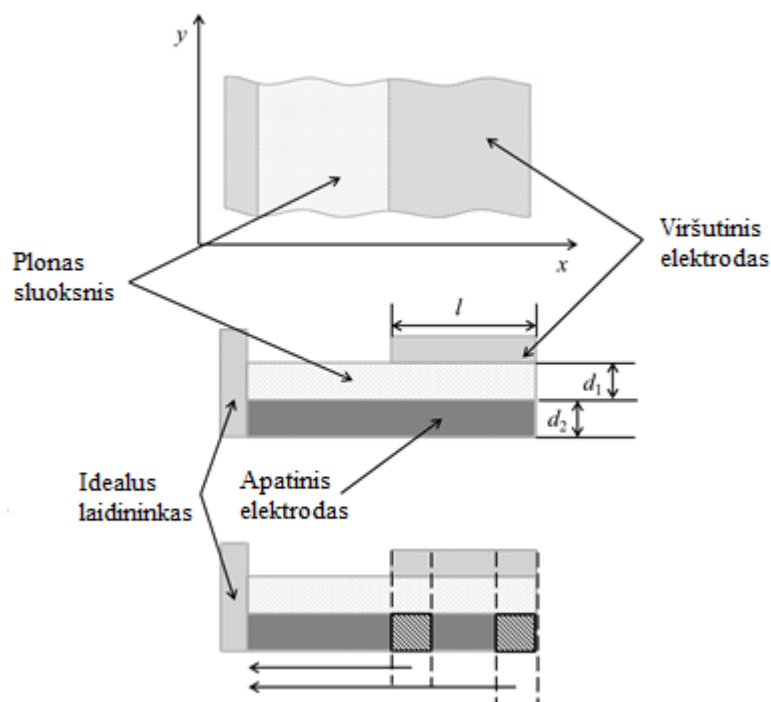
čia:  $A_0$  ir  $n$  yra pastovios fazės elementą aprašantys koeficientai,  $\omega$  – ciklinis dažnis.

Apibendrinant, pastovios fazės elementą (CPE) galima naudoti aprašant feroelektrinių ir neferoelektrinių, bei epitaksinių ir neepitaksinių plonų sluoksnių impedansų spektrus. CPE yra matematinė išraiška, parodanti jog sistemą apibūdinanti vertė yra pasiskirsčiusi. Autorė [22] parodė jog impedanso pasiskirstymo faktorius  $n$ , gali būti aiškinamas kaip epitaksinio plono sluoksnio apatinio elektrodo varžos pasiskirstymas.

## 4. Rezultatai ir jų aptarimas

### 4.1. Teorinis plonų dielektrinių sluoksnių, kuriuose ryškus apatinio elektrodo varžos pasiskirstymas, modelis

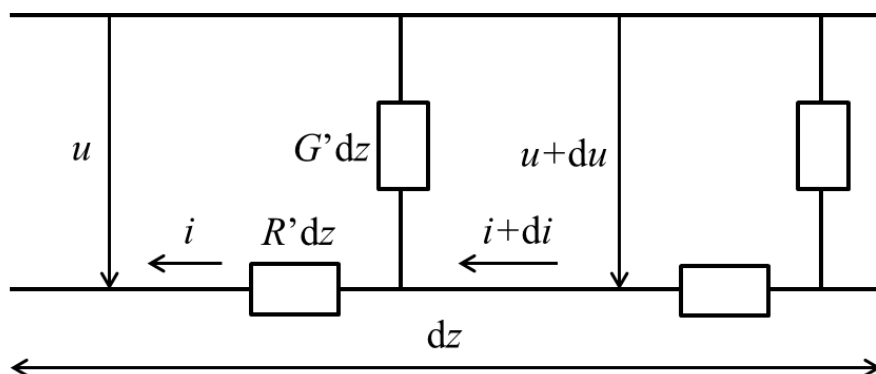
Paskirstyto kontakto modelis buvo sukurtas ir eksperimentiškai patikrintas su BST  $(\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3\text{pc}[001])//$   $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3\text{pc}[001]//$   $(\text{La}_{0.18}\text{Sr}_{0.82})(\text{Al}_{0.59}\text{Ta}_{0.41})\text{O}_3\text{pc}[001]$ , sutrumpintai – BST/LSMO//LSAT) plono sluoksnio eksperimentiniais rezultatais. Matuojamos sistemos schematinė iliustracija pateikta 7 paveikslėlyje.



7 pav. Matuojamos sistemos schematinė iliustracija.

Matuojamą sistemą sudaro apatinis elektrodas, tiriamasis sluoksnis ir viršutinis elektrodas. Jeigu turėtume sistemą, kuri būtų begalinė y ašies kryptimi, tuomet užduotis konverguotų į viendimensinį atvejį. Tai yra arti tiesos, kada viršutinis elektrodas yra arti padėklo krašto ir viršutinio kontakto matmenys daug didesni už tiriamo sluoksnio storį. Taigi, jeigu palygintume dviejų sričių varžas, esančių žemiau viršutinio kontakto, pamatytume jog šių sričių varžos skiriasi. Taip yra dėl to, jog atstumai tarp lyginamų sričių ir bandinio krašto yra skirtingi. Kitaip tariant, apatinio kontakto varža yra pasiskirsčiusi, t.y. priklauso nuo matavimo taško pozicijos. Taigi, matuojamą plono

sluoksnio sistemą galima aprašyti ekvivalentine grandine, kuri sudaryta tik iš rezistorių ( $R'$ ) ir laidininkų ( $G'$ ). Čia rezistoriai simbolizuoja apatinį elektrodą, o laidininkai – ploną sluoksnį (žiūrėti 8 paveikslėlį):



8 pav. Matuojamą sistemą atitinkanti ekvivalentinė grandinė.

Taigi, mano tikslas yra matematiškai aprašyti aukščiau pavaizduotą sistemą. Teorinis modelis išvestas remiantis lygtimis, aprašančiomis perdavimo liniją su nuostoliais [23].

Siekiant išvesti diferencialines ekvivalentinės grandinės lygtis, pirmiausiai reikia užrašyti perdavimo linijos įtampos ir srovės lygtis:

$$\begin{aligned} du &= \frac{\partial u}{\partial z} dz, \\ di &= \frac{\partial i}{\partial z} dz. \end{aligned} \tag{18}$$

Naudojantis pirmu ir antru Kirchhoff dėsniumi, rasime diferencialines lygtis, kuriose bus įvertinta apatinio kontakto varža ( $R'$ ) ir sluoksnio laidumas ( $G'$ ) tenkantis vienetiniam ilgiui:

$$\begin{cases} u = iR'dz + u + \frac{\partial u}{\partial z} dz \\ i = uG'dz + i + \frac{\partial i}{\partial z} dz \end{cases} \tag{19}$$

Atlikus keletą matematinių žingsnių, įvedus sklidimo konstantos išraišką  $\gamma^2 = R'G'$ , bei įvertinus srovės ir įtampos kraštines sąlygas, matuojamos sistemos impedansas išreiškiamas taip:

$$Z = \sqrt{\frac{R'}{G'}} \cdot \frac{e^{\gamma l} + e^{-\gamma l}}{e^{\gamma l} - e^{-\gamma l}} = \sqrt{\frac{R'}{G'}} \cdot \frac{1}{\tanh(\gamma l)} \tag{20}$$

Sekantis žingsnis – susieti vienetinę varžą ( $R'$ ) ir laidumą ( $G'$ ) su sluoksnio ir apatinio elektrodo savybėmis:

$$G' = j\omega \frac{\varepsilon^* \varepsilon_0 l}{d_1}, \quad (21)$$

$$R' = \rho^* \frac{1}{ld_2}, \quad (22)$$

čia:  $\rho^*$  yra apatinio kontakto kompleksinė varža,  $l$  – viršutinio kontakto dydis  $y$  ašies kryptimi (toliau kontakto forma bus traktuojama kaip kvadratinė),  $d_1$  – plono sluoksnio storis,  $d_2$  – apatinio kontakto storis,  $\varepsilon^*$  – plono sluoksnio kompleksinė dielektrinė skvarba,  $\varepsilon_0$  – elektrinė konstanta.

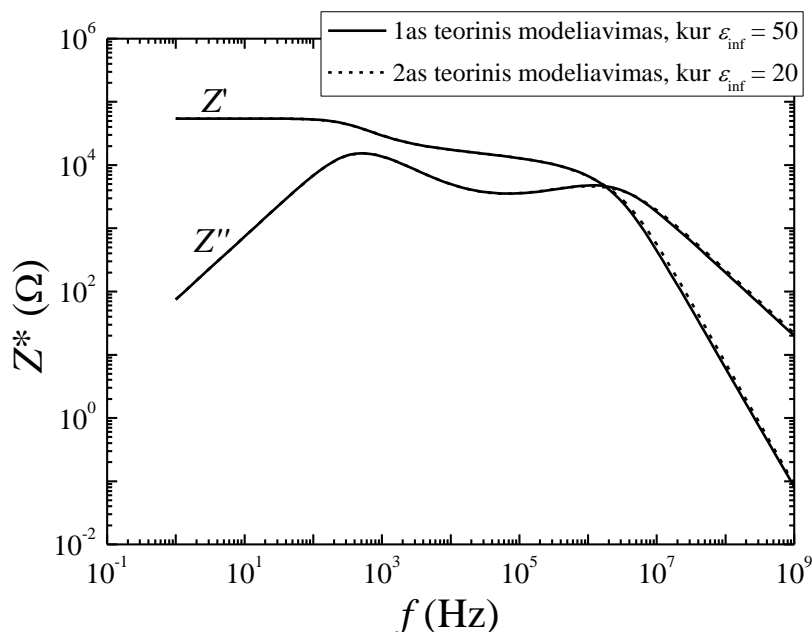
Kompleksinė varža ir kompleksinė dielektrinė skvarba priklauso nuo dažnio ir bendrais bruožais gali būti aprašoma kaip Havriliak-Negami relaksacijų superpozicija:

$$\rho^* = \frac{\Delta\rho}{(1 + (j\omega\tau_1)^{\alpha_1})^{\gamma_1}}, \quad (23)$$

$$\varepsilon^* = \varepsilon_\infty + \frac{\Delta\varepsilon}{(1 + (j\omega\tau_2)^{\alpha_2})^{\gamma_2}} + \frac{1}{j\omega\varepsilon_0\rho_c},$$

čia:  $\Delta\rho$  ir  $\Delta\varepsilon$  yra relaksacijos stipriai,  $\tau_1$  ir  $\tau_2$  – vidutinės relaksacijos trukmės,  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  ir  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  apibūdina atitinkamai spektrų asimetriškumą ir spektrų plotį,  $\rho_c$  – plono sluoksnio varža,  $\varepsilon_\infty$  – aukštadažnė dielektrinė skvarba.

Taigi, naudojantis 20 lygtimi galime aprašyti eksperimentinius rezultatus. Pateiktas modelis galioja jeigu turim eksperimentinius rezultatus visoje dispersijos srityje, įskaitant ir visus aktualius procesus. Paprastai, tokia situacija yra retai galima.



9 pav. Teoriškai modeliuoto kompleksinio impedanso priklausomybė nuo dažnio, naudojant paskirstyto kontakto modelį.

Kompleksinio impedanso modeliavimo rezultatai, naudojant paskirstyto kontakto modelį, pateikta 9 paveikslėlyje. Rezultatų modeliavimas buvo atliekamas du kartus esant skirtingoms aukštadažnės dielektrinės skvarbos vertėms. Pastebėta, jog vienintelis skirtumas tarp sumodeliuotų kreivių yra tik skirtingos  $\rho_c$  ir  $\Delta\varepsilon$  vertės  $1 \text{ Hz} - 10^7 \text{ Hz}$  dažnių intervale. Tai reiškia jog plono sluoksnio varža ( $\rho_c$ ) ir dielektrinės skvarbos relaksacijos stipris ( $\Delta\varepsilon$ ) yra glaudžiai susiję, t.y. parametras  $\rho_c$  yra atvirkščiai proporcingas parametrai  $\Delta\varepsilon$ . Taigi, norint aproksimuoti eksperimentinius rezultatus, reikia žinoti pirminės sluoksnio varžos ir dielektrinės skvarbos relaksacijos stiprio vertes. Kitaip tariant, reikia surasti matematinės impedanso išraiškas, esant žemo dažnio ribojimui ir ribojimui didelio kontakto atveju. Iš gautų impedanso išraiškų surasime pradines plono sluoksnio laidumo ir dielektrinės skvarbos išraiškas.

Taigi, pradinė plono sluoksnio varžos vertė yra lygi pusei varžos relaksacijos stiprio vertės:

$$\rho_c = \frac{1}{2} \Delta\rho. \quad (24)$$

Tuo tarpu, pradinė plono sluoksnio dielektrinės skvarbos vertė yra išreiškiama taip:

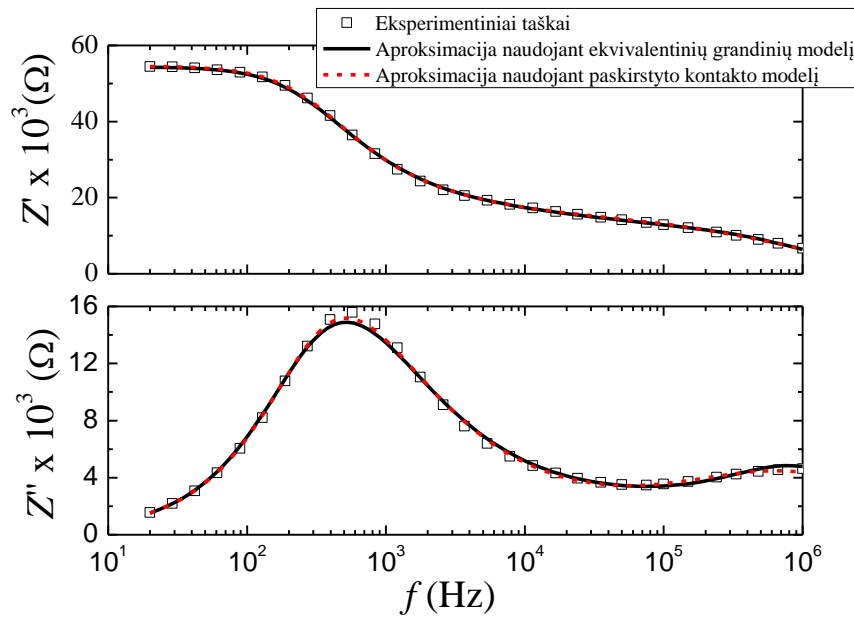


$$\varepsilon_c = \frac{\tau_c}{\varepsilon_0 \rho_c}, \quad (25)$$

čia:  $\tau_c$  yra plono sluoksnio relaksacijos trukmė,  $\rho_c$  – plono sluoksnio varža.

#### 4.1.1. Teorinio modelio eksperimentinis įvertinimas

Siekiant įvertinti pasiūlyto modelio efektyvumą, eksperimentinius rezultatus aprašėm ekvivalentinių grandinių modeliu, bei paskirstyto kontakto modeliu (žiūrėti 10 paveikslėly).



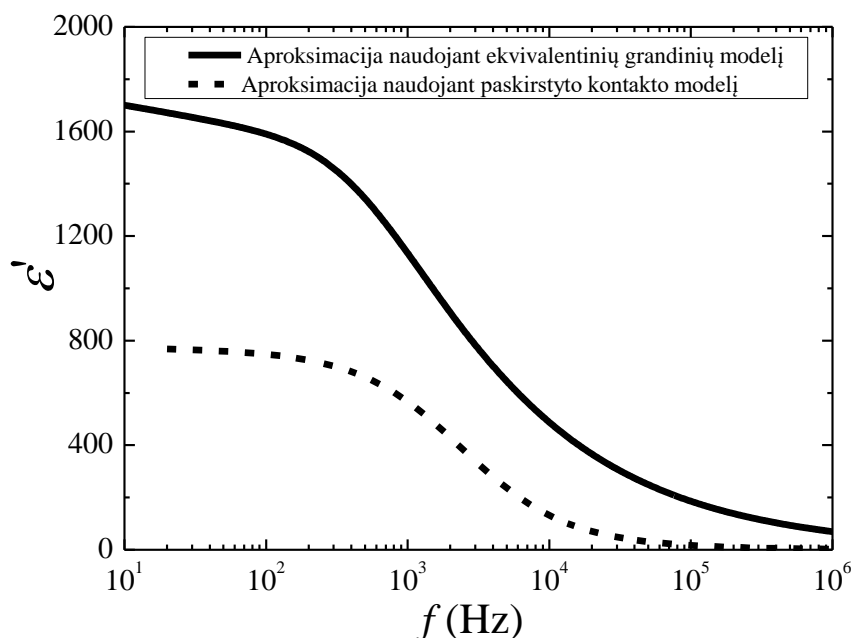
10 pav. BST plono sluoksnio kompleksinio impedanso priklausomybė nuo dažnio: ištininė linija reprezentuoja dielektrinę skvarbą, kuri gauta iš ekvivalentinių grandinių modelio, kai visi parametrai yra be apribojimų; brūkšninė linija atitinka dielektrinę skvarbą, gautą iš paskirstyto kontakto modelio.

26 lygtis naudojama aproksimuojant eksperimentinius rezultatus ekvivalentinių grandinių metodu:

$$Z^*(\omega) = Z(\infty) + \frac{\Delta Z_1}{(1 + (i\omega\tau_1)^{\alpha_1})^\gamma} + \frac{\Delta Z_2}{1 + (i\omega\tau_2)^{\alpha_2}}. \quad (26)$$

Čia visi parametrai yra laisvai kintantys, be jokių apribojimų. 26 lygtį sudaro dvi dalys: pirmoji dalis aprašo žemadažnę relaksaciją (nuo 20 Hz iki  $10^5$  Hz), o antroji dalis aprašo relaksaciją stebimą aukštuose dažniuose (nuo  $10^5$  Hz iki  $10^6$  Hz).

Kaip matome skirtumai tarp aproksimacijų, pateiktų 10 paveiksle yra minimalūs. Didžiausi nesutapimai pasireiškia aukštuose dažniuose, kuriuose vyrauja apatinio elektrodo relaksacijos procesas. Tuo tarpu žemadažnis relaksacijos procesas yra nulemtas ploname sluoksnyje pasireiškiančių procesų. Mūsų atveju, tik pastarasis yra reikšmingas perskaičiuojant dielektrinę skvarbą, todėl galime nepaisyti aukštadažnės dispersijos. Taigi, jeigu bandysime perskaičiuoti dielektrinės skvarbos vertes gautas iš ekvivalentinių grandinių modelio ir paskirstyto kontakto modelio, pamatysim, jog atsiranda dideli nesutapimai tarp dielektrinės skvarbos verčių, kurie pavaizduoti 11 paveikslėlyje.



11 pav. Perskaičiuoto BST plono sluoksnio dielektrinės skvarbos priklausomybė nuo dažnio, naudojant skirtingus aproksimacinius modelius: ištisinė linija vaizduoja dielektrinę skvarbą, kuri gauta iš ekvivalentinių grandinių ir plokščio kondensatoriaus aproksimacijų, brūkšninė linija atitinka dielektrinę skvarbą, gautą iš paskirstyto kontakto modelio.

Matome, jog didžiausi skirtumai pasireiškia žemuose dažniuose, t.y. nuo 20 Hz iki  $10^3$  Hz. Žemadažnė dielektrinės skvarbos vertė skiriasi daugiau negu du kartus. Tuo tarpu, dielektrinės skvarbos sumažėjimas aukštuose dažniuose (nuo  $10^3$  Hz iki  $10^6$  Hz) nėra ištaisytas ir neaišku ar tai ne artefaktas. Pagrindinis paskirstyto kontakto modelio pliusas

yra tas, jog šis modelis efektyviai aprašo elektrinį komplikuotos heterostruktūros (BST/LSMO//LSAT) atsaką. Tačiau taip pat yra ir keletas minusų: pateiktas modelis tinkamas tik jeigu naudojame harmoninį signalą ir atliekame tiesinius matavimus. Kita potencialiai galima problema yra krūvininkų injekcija iš apatinio kontakto į ploną sluoksnį. Ši krūvininkų injekcija labiausiai tikėtina, kai prijungtas DC laukas, todėl dielektrinės medžiagos laidumas pakinta.

#### **4.1.2. Santrauka**

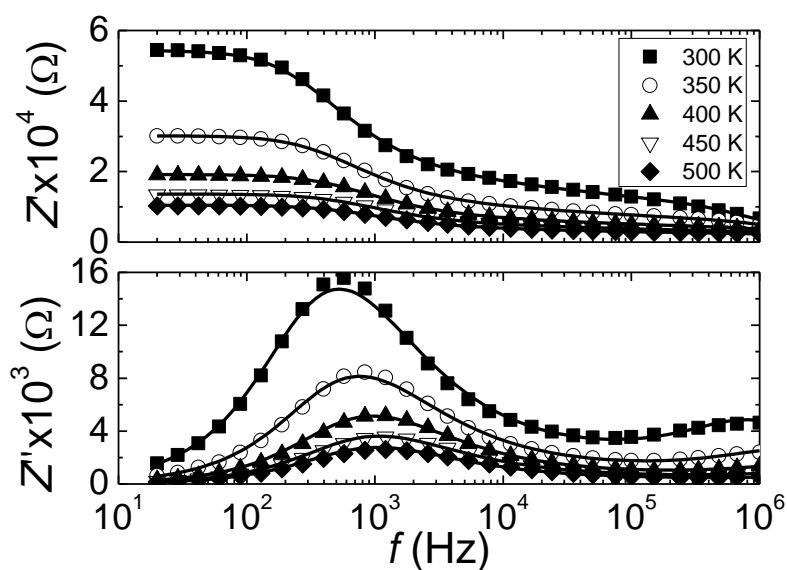
Teorinis plonų dielektrinių sluoksnių modelis, kuriuose ryškus apatinio elektrodo varžos pasiskirstymas, buvo sukurtas ir patikrintas su sudėtingomis plonų sluoksnių heterostruktūromis (laidus funkcinis sluoksnis, žemas elektrinio sluoksnio laidumas). Buvo nagrinėjamas kvazi viendimensinis atvejis, kada sistema yra begalinė y ašies kryptimi. Patikrintas pasiūlyto modelio efektyvumas. Aprašytas teorinis modelis turi keletą minusų, tokių kaip sudėtingumas, pritaikomumas tik tiesinėms sistemoms, potencialiai netinkamas esant DC elektriniam laukui. Nepaisant šių minusų, paskirstyto kontakto modelis fizikiniu požiūriu teisingai aprašo eksperimentinius rezultatus, skirtingai negu ekvivalentinių grandinių modelis. Galiausiai, buvo pasiūlytas algoritmas, kaip surasti pradines plono sluoksnio varžos ir dielektrinės skvarbos vertes.

#### **4.2. Plonų sluoksnių matavimo rezultatai: bario stroncio titanatas**

Epitaksiniai ploni  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  (BST70/30) sluoksniai gaminti pasitelkiant impulsinio lazerinio garinimo metodą (angliškai PLD) ant  $SrTiO_3$  (STO) kristalinio padėklo.  $La_{0.8}Sr_{0.2}MnO_3$  (LSMO) arba  $SrRuO_3$  (SRO) naudoti kaip apatiniai elektrodai. Plačiau apie gamybą galima paskaityti čia: [24]. Kompleksinis impedansas matuotas nuo 20 Hz iki 1MHz dažnių ir nuo 300 K iki 500 K temperatūrų intervaluose naudojant HP4284 LCR matuoklį. Matavimai atlikti šaldymo cikle, vėsinant iki 300 K, kai vėsimo greitis siekė apie 1 K/min. Eksperimentinių BST plono sluoksnio su LSMO apatiniu elektrodu rezultatų aproksimacijai buvo naudojamas paskirstyto kontakto modelis.

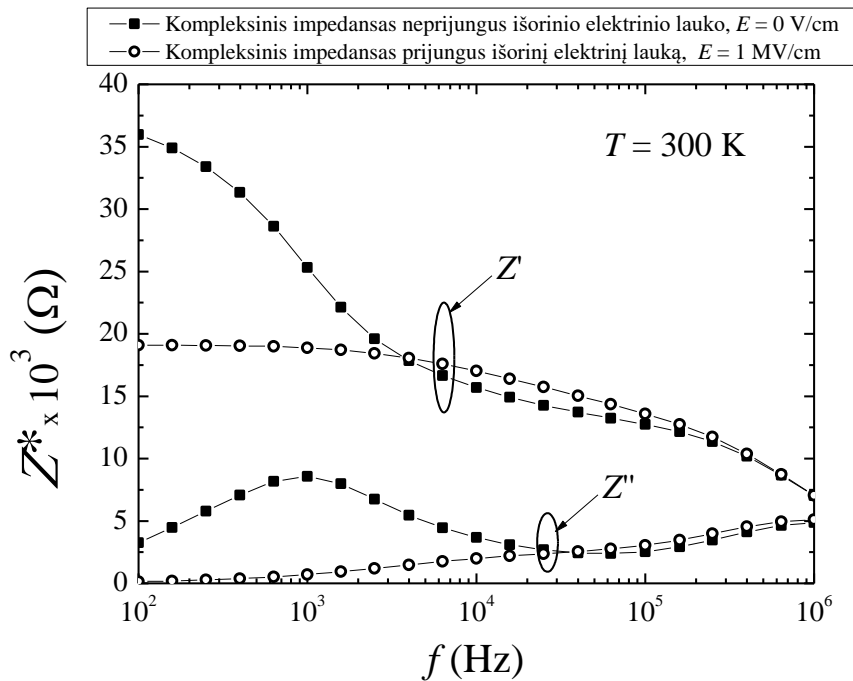
#### 4.2.1. $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$ / $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ // $\text{SrTiO}_3$ heterostruktūros kompleksinio impedanso spektroskopija

$\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  /  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  //  $\text{SrTiO}_3$  epitaksinio sluoksnio, kurio storis yra 76 nm, kompleksinio impedanso priklausomybė nuo dažnio pateikta 12 paveikslėlyje. Išsitiesinės linijos atitinka aproksimaciją paskirstyto elektrodo modeliu. Žemadažnę dispersiją galima susieti su procesais stebimais ploname sluoksnyje. Tuo tarpu aukštuose dažniuose stebimą dispersiją galima sieti su LSMO apatiniu elektrodu. Šią prielaidą patvirtina eksperimentiniai rezultatai pavaizduoti 13 paveikslėlyje, kuriuose pridėtas išorinis elektrinis laukas sumažina kompleksinio impedanso vertes tik žemuose dažniuose.



12 pav.  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  plono sluoksnio kompleksinio impedanso priklausomybė nuo dažnio. Išsitiesinės linijos vaizduoja aproksimaciją paskirstyto kontakto modeliu.

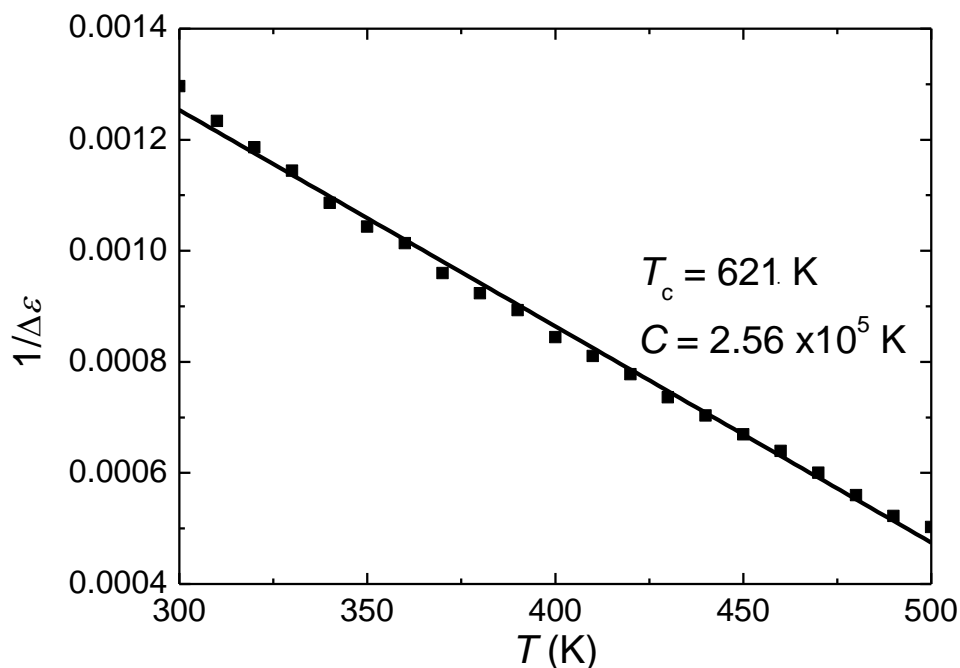
Stebimos abi dispersijos yra persiklojusios ir statinė impedanso vertė, stebima aukštuose dažniuose, yra palyginama su visos sistemos matuojamo impedanso verte, todėl negalima atskirti šių procesų norint teoriškai aprašyti eksperimentinius rezultatus. Dėl šios priežasties, buvo taikomas paskirstyto apatinio kontakto modelis, siekiant teoriškai aprašyti eksperimentinius rezultatus.



13 pav.  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  plono sluoksnio kompleksinio impedanso priklausomybė nuo dažnio be ir su prijungtu išoriniu elektriniu lauku.

$\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  plono sluoksnio kompleksinio impedanso priklausomybė nuo dažnio kambario temperatūroje be ir su prijungtu išoriniu elektriniu lauku pavaizduota 13 paveikslėlyje. Kompleksinio impedanso sumažėjimas stebimas tik žemuose dažniuose, kai išorinis elektrinis laukas lygus  $E = 1$  MV/cm.

Taigi, atsižvelgiant į aukščiau minėtą ribojimą, paskirstyto kontakto modelis buvo taikomas analizuojant eksperimentinius rezultatus. Taigi, perskaičiuota temperatūrinė dielektrinio stiprio priklausomybė (300 K – 500 K temperatūrų intervale) pateikta 14 paveikslėlyje.

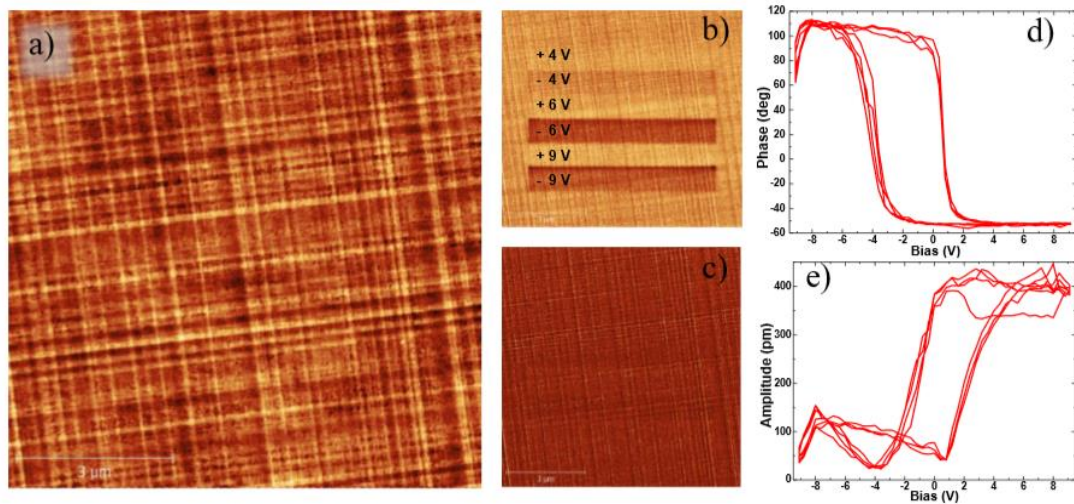


14 pav. Atvirkštinio dielektrinio stiprio priklausomybė nuo temperatūros. Ištinė linija vaizduoja aproksimaciją Curie-Weiss dėsnio.

Pastebėta jog atvirkštinė dielektrinė skvarba mažėja, didėjant temperatūrai ir seka Curie –Weiss dėsnį. Atlikus aproksimaciją šiuo dėsnio, gauta, jog Curie temperatūra yra lygi apytiksliai 620 K. Norint gauti teorinį Curie temperatūros vertinimą, reikia suskaičiuoti gardelės mechaninį suspaudimą bandinio plokštumoje ir statmenai bandinio plokštumai. Taigi, BST plono sluoksnio mechaninis gardelės suspaudimas bandinio plokštumoje lygus  $\varepsilon(RT) = (a_f - a_b)/a_b = -1.4\%$  kambario temperatūroje. Tuo tarpu BST plono sluoksnio mechaninis gardelės suspaudimas statmenai bandinio plokštumai lygus  $\varepsilon(RT) = (c_f - a_b)/a_b = 2.4\%$ . Z.-G. Ban ir kiti [25] atliko teorinius skaičiavimus, kurie parodo, jog galima padidinti feroelektrinio fazinio virsmo temperatūrą daugiau nei 300 K esant -1.4 % neigiamam įtempimui. Tokiu atveju, Curie temperatūra būtų lygi  $T_c = 650$  K ir tai reiškia jog BST kambario temperatūroje yra feroelektrinėje fazėje. Šią hipotezę patvirtino Bagdzevicius ir kiti [26] atlikdamas PFM eksperimentus.

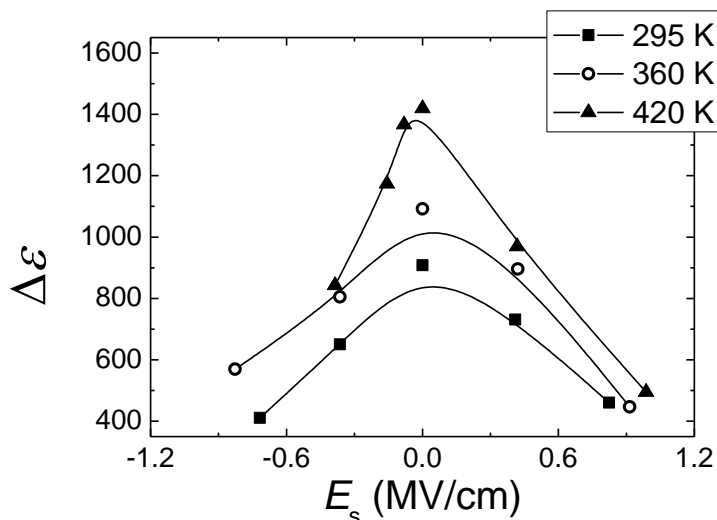
BSTpc(001)/LSMOpc(001)//STOc(001) plono sluoksnio, kurio storis yra 76 nm, PFM tyrimai atlikti siekiant patvirtinti, jog kambario temperatūroje BST yra feroelektrinėje fazėje. Žemiau fazinio virsmo temperatūros, BST gardelė patiria

papildomus įtempimus, dėl kristalinės simetrijos pasikeitimo iš kubinės į tetragoninę struktūrą. Tuo tarpu, BST sluoksnis pasižymi tetragonine simetrija, netgi sluoksnio auginimo temperatūroje, t.y. ties 750 – 800 °C, dėl atsiradusių gardelės įtempimų. Žemiau Curie temperatūros, papildomi įtempimai nurelaksuoja, formuojant a/c domenų struktūrą, taip kaip aprodyta PFM nuotraukose (žiūrėti 15 pav eikslėlių).



15 pav. 76 nm BST įtempto plono sluoksnio PFM nuotraukos kambario temperatūroje: a) topografija (0.8 nm aukščio skirtumas) b) statmena bandinio paviršiui PFM amplitudė (80 pm amplitudžių skirtumas) c) PFM fazė (15° skirtumas), po poliarizavimo (įtampa siekė iki 9 V). Pjezoelektrinių įtempimų d) fazės ir e) amplitudės histerezinės kilpos, matuotos PFM'u. Paveikslėlis pritaikytas iš [26].

Taigi, įrašytas 88 kV/cm elektrinis laukas pasireiškia kaip *c*-domenų poliarizacija (15 b) paveikslėlis) ir todėl stebima asimetrinė pjezoelektrinės histerezės kilpa (15 e) paveikslėlis). Įrašytas elektrinis laukas taip pat pasireiškia ir makraskopiniuose matavimuose, t.y. pasireiškia kaip dielektrinio stiprio valdomumas (žiūrėti 16 paveikslėlių).



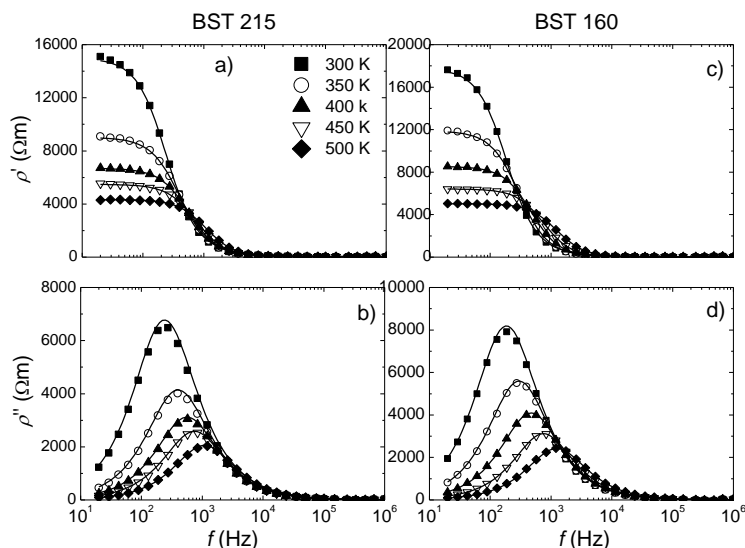
16 pav. Relaksacijos stiprio valdomumas elektriniu lauku. Taškai vaizduoja eksperimentines vertes, ištisinės linijos – aproksimaciją naudojant Johnson sąryšį (žiūrėti 15 išraišką).

Matome, jog dielektrinis stipris sumažėja daugiau negu 50 % visose temperatūrose, kai prijungta išorinė įtampa. Dielektrinio stiprio kreivių asimetriškumą lemia įrašytas vidinis laukas. Taip pat galima pastebėti, jog dielektrinio stiprio vertė neįsisotina, net esant 1 MV/cm (20 V) išoriniam laukui, todėl tikėtinas tolimesnis dielektrinio stiprio mažėjimas.

#### 4.2.2. $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ / $SrRuO_3$ // $SrTiO_3$ heterostrukūros kompleksinio impedanso spektroskopija

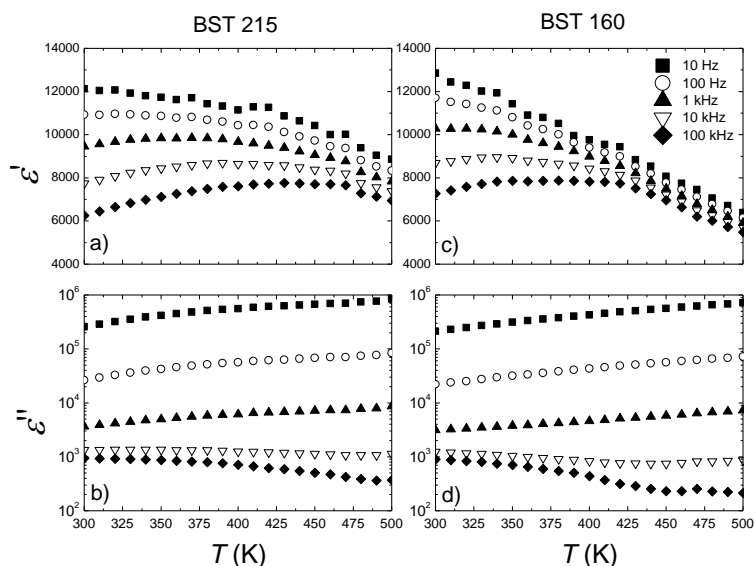
Dviejų storių: 215 ir 160 nm,  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  /  $SrRuO_3$  //  $SrTiO_3$  heterostrukūros kompleksinės specifinės varžos priklausomybė nuo dažnio pateikta 17 paveikslėlyje. Abiejuose bandiniuose, tik viena specifinės varžos dispersija matoma dažniuose, žemesniuose nei ~10 kHz. Todėl, paskirstyto kontakto modelis yra nebūtinai, analizuojant eksperimentinius rezultatus. Kaip matome iš 17 paveikslėlio, šaldymo cikle, kompleksinės specifinės varžos menamosios dalies maksimumas mažėjant dažniui slenka į aukštesnių temperatūrų sritį, o tai reiškia termiškai stimuliuotą šios dispersijos prigimtį.





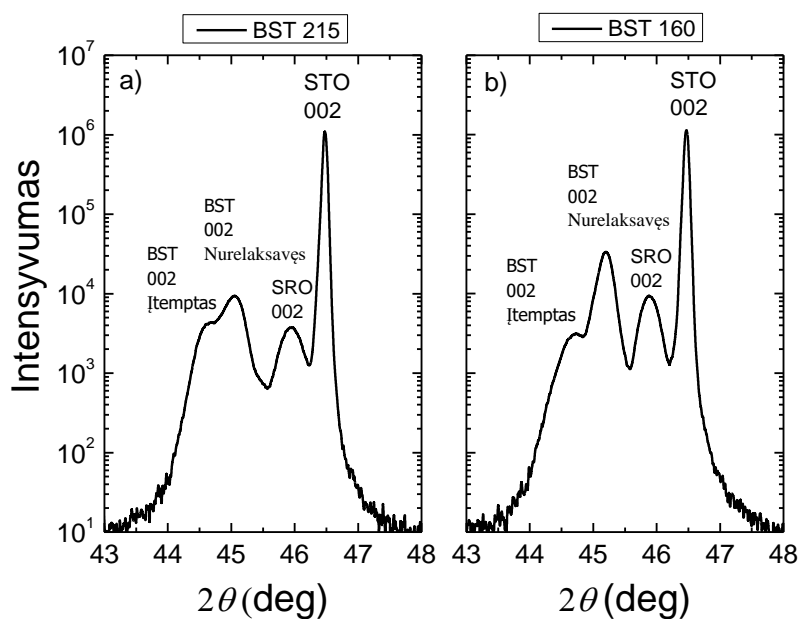
17 pav. a) ir b) vaizduoja BST 215 nm plono sluoksnio kompleksinės specifinės varžos priklausomybę nuo dažnio. c) ir d) yra BST 160 nm plono sluoksnio kompleksinės specifinės varžos priklausomybę nuo dažnio. Ištinės linijos vaizduoja aproksimaciją Havriliak-Negami lygtimi.

Analizuojant eksperimentinius rezultatus naudojome Havriliak–Negami lygtį (13 lygtis), kurios pagalba suskaičiavome dielektrinės skvarbos priklausomybę nuo temperatūros.



18 pav. a) ir b) vaizduoja BST 215 nm, o c) ir d) vaizduoja BST 160 nm plonų sluoksnių kompleksinės dielektrinės skvarbos priklausomybę nuo temperatūros.

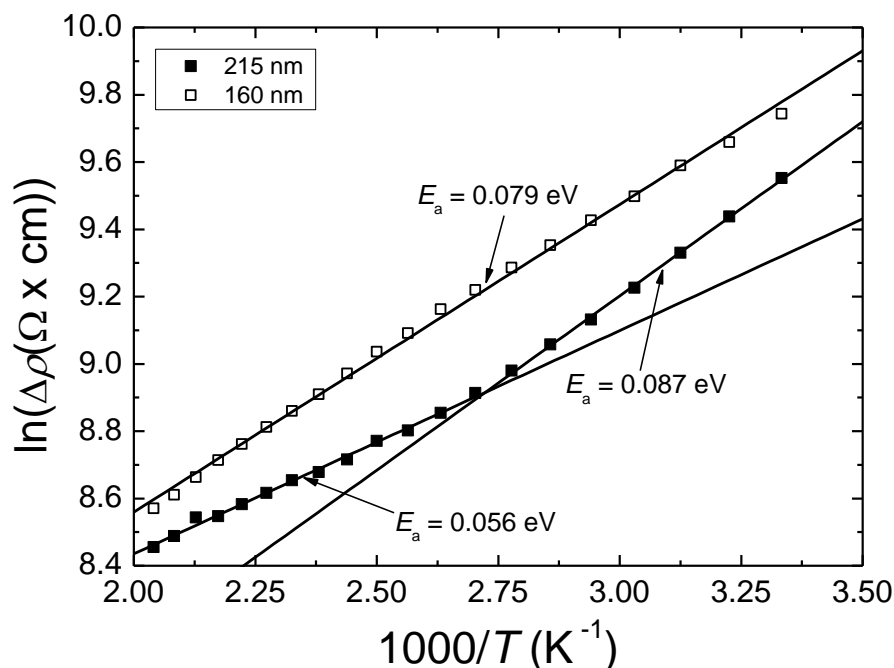
Dielektrinės skvarbos priklausomybė nuo temperatūros pateikta 18 paveikslėlyje. Matome, jog dielektrinės skvarbos anomalija stebima apytiksliai ties 400 K temperatūra ir tik aukštuose dažniuose. Kitaip tariant ši anomalija yra temperatūroje tarp fazinio virsmo temperatūros, stebimos tūrinėse medžiagose (šiek tiek žemiau kambario temperatūros) ir fazinio virsmo temperatūros, sukeltos dėl ploname sluoksnyje atsiradusių įtempimų dėl gardelių nesutapimų (apie 650 K). Fazinio virsmo taške, tikrasis dielektrinės skvarbos maksimumas nestebimas, t.y. skvarbos maksimumas yra išplaukęs dėl didelio elektrinio laidumo, kaip ir matoma 18 paveikslėlio b) ir d) dalyse. Čia, žemuose dažniuose dielektriniai nuostoliai pakankamai dideli, kad ekranuotų dielektrinį atsaką. Kita susilpnėjusių feroelektrinių savybių priežastis yra dėl dydžio efekto [27]. Gali būti, jog mūsų matuojamame ploname sluoksnyje stebima abiejų efektų superpozicija.



19 pav. X-spindulių difraktogramos ( $\omega$ - $2\Theta$  skenavimas): a) 215 ir b) 160 nm sluoksnių.

215 ir 160 nm storio BST plono sluoksniu XRD matavimai pateikti 19 paveikslėlyje. Matome, jog abiejuose heterostrukūrose, STO, SRO ir BST pikai ryškiai išsiskiria. Heterostrukūroje, kurioje BST sluoksniu storis yra 215 nm, BST 002 pikas yra suskilęs į du pikus ties  $44.63^\circ$  ir  $45.06^\circ$  ( $44.71^\circ$  ir  $45.2^\circ$ , BST sluoksniu, kurio storis 160 nm). Šią situaciją galima sieti su dviejų subsluoksnių formavimusi. Kaip matome iš pateiktos BST 160 difraktogramos, nurelaksavusios dalies difrakcinis intensyvumas yra daug didesnis už įtemptos dalies (absoliutus intensyvumas skiriasi

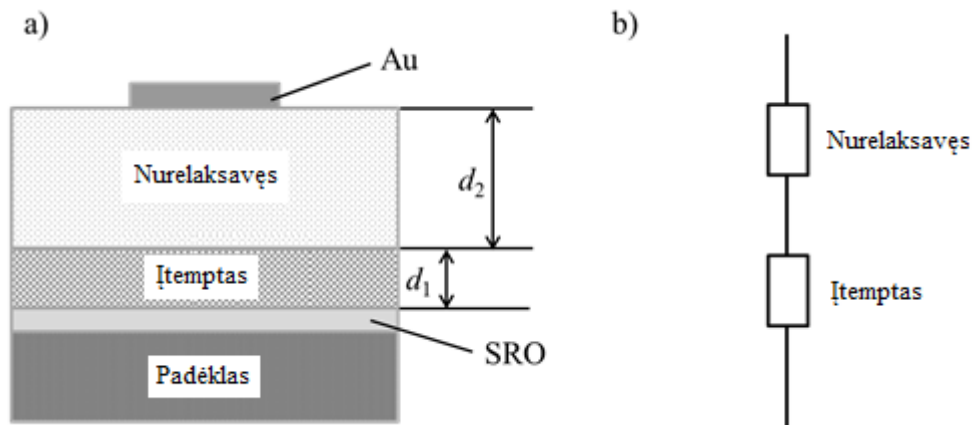
daugiau negu 10 kartų). Tai reiškia jog beveik visas BST sluoksniu yra nurelaksavęs. Tuo tarpu, BST 215 bandinys pasižymi dviem sritimis, kuriose vyrauja skirtingi įtempimai, tačiau difrakcinis intensyvumas yra panašus. Skirtingas įtemptų ir nurelaksavusių BST subsluoksnių egzistavimas, esant skirtingiems bandinio storiams, patvirtinamas atvaizdavirus statinės specifinės varžos priklausomybę nuo atvirkštinės temperatūros (žiūrėti 20 paveikslėlį).



20 pav. BST plono sluoksnio statinės specifinės varžos priklausomybė nuo atvirkštinės temperatūros.

Pateikti rezultatai reprezentuoja priklausomybes pagal Arrhenius dėsnį, todėl eksperimentiniai taškai aproksimuoti naudojant 14 lygtį. Pastebėta, jog ploname sluoksnyje, kurio storis 160 nm egzistuoja tik viena sritis, kurios aktyvacijos energija lygi 0.079 eV. Tuo tarpu 215 nm storio plonas sluoksniu turi dvi išreikštas sritis su skirtingomis aktyvacijos energijomis: 0.056 eV virš ir 0.087 eV žemiau 370 K temperatūros. Tai galima aiškinti netolyginiu sluoksnio įtempimu. Toliau pristatysiu eksperimentinius rezultatus aiškinantį modelį.

Tarkime, jog matuojama sistema sudaryta iš apatinio ir viršutinio elektrodų, bei dviejų funkcinių sluoksnių (įtempto ir nurelaksavusio) taip kaip parodyta 21 paveikslėlyje.



21 pav. a) Plono sluoksnio, sudaryto iš dviejų subsluoksnių ir b) sistemos ekvivalentinės grandinės, schematinė iliustracija.

Kalbant apie 215 nm storio sluoksnį, abu subsluoksniai yra praktiškai vienodo storio, tuo tarpu kitu atveju, vienas subsluoksnis (nurelaksavęs) yra daug storesnis negu kitas. Pvz., pirmuoju atveju galima teigti jog  $d_1 = d_2 = 100$  nm, o antruoju atveju  $d_1 = 10$  nm ir  $d_2 = 150$  nm. Tuomet galime perrašyti Arrhenius dėsnį kiekvienam funkciniam sluoksniui:

$$R_{strained} = \rho_1 \cdot \frac{d_1}{S} \cdot e^{\left(\frac{E_1}{kT}\right)},$$

$$R_{relaxed} = \rho_2 \cdot \frac{d_2}{S} \cdot e^{\left(\frac{E_2}{kT}\right)},$$
(27)

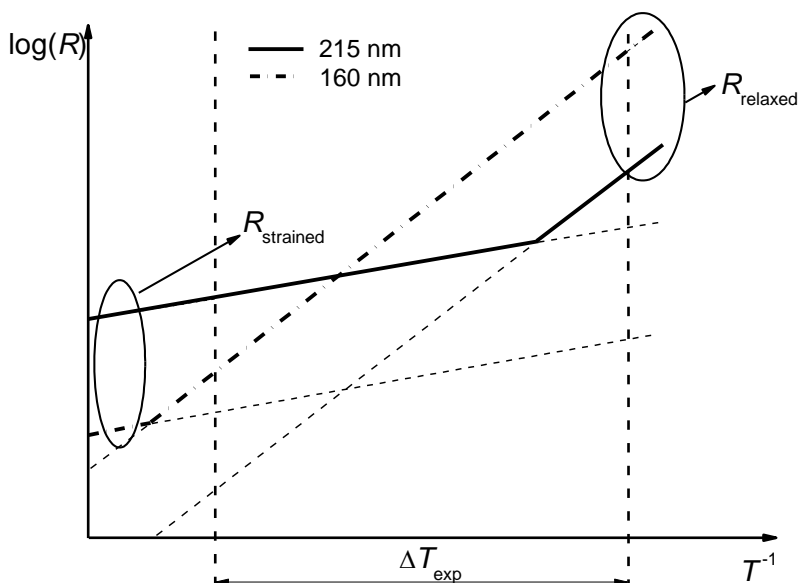
čia:  $S$  yra viršutinio elektrodo plotas.

Suminė bandinio varža lygi įtempto ir nurelaksavusio funkcinio subsluoksnio varžų sumai:

$$R = R_{strained} + R_{relaxed}.$$
(28)

Tokiu atveju, didesnė funkcinio subsluoksnio varža labiau įtakos suminę sistemos varžą ir eksperimentiškai stebimos aktyvacijos energijos vertė bus nulemta dominuojančios varžos aktyvacijos energijos. Plono sluoksnio, sudaryto iš dviejų subsluoksnių, suminės elektrinės varžos priklausomybė nuo atvirkštinės temperatūros schematiškai pavaizduota 22 paveikslėlyje. Čia, vertikalios juodos brūkšninės linijos simbolizuoja matuojamą temperatūros intervalą. Atitinkamai ištisinė raudona ir juoda linijos vaizduoja suminę varžą, esant 160 nm ir 215 nm sluoksnio storiui. Taigi, ši iliustracija parodo, jog tokia pati varžos elgsena stebima abiem atvejais. Matome, kaip funkcinio sluoksnio storis yra

160 nm, įtempto subsluoksnio varža dominuoja daug aukštesnėse temperatūrose, negu esant 215 nm funkcinio sluoksnio storiui.



22 pav. Plono sluoksnio, sudaryto iš dviejų subsluoksnų, suminės elektrinės varžos priklausomybė nuo atvirkštinės temperatūros schematinė iliustracija. Išsistinės linijos vaizduoja bandinio suminę varžą.

Apibendrinant, pateiktas modelis mums leidžia susieti aktyvacijos energijas su sluoksnio įtempimais. Taip yra dėl to jog, abu bandiniai buvo gaminami esant vienodoms sąlygoms, išskyrus sluoksnio auginimo laiką, kas leido kontroliuoti sluoksnio storį. Todėl galima tikėtis jog bandiniai yra su tokiais pačiais defektais.

Aktyvacijos energijos priklausomybė nuo įtempimų pateikta 1 lentelėje:

1 lentelė. BST sluoksnio aktyvacijos energijos priklausomybė nuo statmeno paviršiui įtempimo esant skirtingiems bandinio storiams.				
Bandinio storis	Įtempimas, %		Aktyvacijos energija, meV	
	Įtemptas	Nurelaksavęs	Įtemptas	Nurelaksavęs
160 nm	1.38	0.33	-	79±0.8
215 nm	1.56	0.65	56±1.1	87±1.2

Galime pastebėti, jog specifinės varžos aktyvacijos energija yra atvirkščiai proporcinga sluoksnio įtempimui, jeigu priemaišų koncentracija yra tokia pati. Kadangi tirti sluoksniai yra epitaksiniai ir sluoksnio varža buvo matuotas statmenai bandinio paviršiui, tai reiškia jog statmenas paviršiui teigiamas įtempimas sumažina krūvininkų aktyvacijos energiją, kas nulemia specifinės varžos aktyvacijos energijos sumažėjimą.

### 4.2.3. Santrauka

Pristatyti eksperimentiniai  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  /  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  //  $\text{SrTiO}_3$  ir  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  /  $\text{SrRuO}_3$  //  $\text{SrTiO}_3$  epitaksinių sluoksnių rezultatai. Pirmiausiai buvo pastebta, jog laidaus sluoksnio pasirinkimas stipriai įtakoja eksperimentinių rezultatų analizavimą. Todėl, matuojamos sistemos kompleksinis impedansas yra stipriai įtakotas laidaus sluoksnio (LSMO), kas nulemia impedanso dispersijos atsiradimą aukštuose dažniuose (nuo 100 kHz iki 1MHz), kuri negali būti atmesta analizuojant eksperimentinius rezultatus. Todėl, heterostruktūrose, kuriose LSMO sluoksnis yra naudojamas kaip laidininkas, analizuojant eksperimentinius rezultatus reikia įdėti papildomų pastangų. Tuo tarpu, heterostruktūrose su SRO laidžiu sluoksniu, nestebima papildoma aukštadažnė dispersija, kas lemia paprastesnę eksperimentinių rezultatų analizavimo algoritmą.

Įrašytas elektrinis laukas ir laukas, atsiradęs dėl vidinių įtempimų, stipriai įtakoja funkcinio BST sluoksnio savybes (dielektrinę skvarbą ir elektrinio atsako valdomumą elektriniu lauku). Eksperimentiškai patvirtinta, jog fazinio virsmo temperatūra padidėja, kai  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  /  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  //  $\text{SrTiO}_3$  ploname sluoksnyje stebimas neigiamas -1.4 % įtempimas. Remiantis impedansų analize galima daryti išvadą, jog Curie temperatūra padidėja daugiau negu 300 K ( $T_c \approx 620$  K) ir sutampa su teoriniais skaičiavimais. Taip pat, parodžiau jog įrašytas 88 kV/cm elektrinis laukas ir -1.4 % įtempimų laukas atsiradęs dėl gardelių nesutapimo, nepablogina dielektrinės skvarbos valdomumo elektriniu lauku (stebimas dielektrinės skvarbos sumažėjimas daugiau negu 50 % visose temperatūrose). Tuo tarpu, tiriant  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  /  $\text{SrRuO}_3$  //  $\text{SrTiO}_3$  aukštuose dažniuose pastebėta dielektrinė anomalija ties 400 K. Apibendrinant, pastebėta, jog fazinio virsmo temperatūrą galima kontroliuoti keičiant epitaksinio sluoksnio įtempimus.

Atlikus  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3 / SrRuO_3 // SrTiO_3$  epitaksinio sluoksnio analizę, buvo pastebėta jog BST sluoksnis susideda iš dviejų subsluoksnių; vienas iš jų yra pilnai įtemptas, o kitas yra nurelaksavęs. Šie subsluoksniai pasižymi skirtingomis specifinės varžos aktyvacijos energijomis. Siekiant paaiškinti eksperimentinius rezultatus, buvo pasiūlytas teorinis modelis, kuris veda į svarbią išvadą – plonuose sluoksniuose stebimas statmenas paviršiumi teigiamas įtempimas mažina krūvininkų aktyvacijos energiją.

Tiriant BST 70/30 epitaksinius sluoksnius pastebėta, jog dielektrinės skvarbos kreivės plokštėja ir dielektrinės skvarbos vertės mažėja lyginant su tūrinėmis medžiagomis. BST plono sluoksnio dielektrinės skvarbos elgseną galima aiškinti dvejopai: žemo dažnio dielektriniai nuostoliai yra labai dideli, todėl jie ekranuoja dielektrinį atsaką arba feroelektrinių savybių silpnėjimas atsiranda dėl dydžio efekto. Labiausiai tikėtina jog mūsų sluoksniuose matome šių abiejų efektų superpoziciją.

### **4.3. Plonų sluoksnių ir kristalų matavimo rezultatai: švino mangano niobatas – švino titanatas**

$0.71Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-0.29PbTiO_3$  (sutrumpintai 0.71PMN-0.29PT) monokristalai, orientuoti tokiomis kristalografinėmis kryptimis:  $\langle 001 \rangle$ ,  $\langle 011 \rangle$  ir  $\langle 111 \rangle$ , buvo gaminti „H.C. Materials Corporation“ Jungtinėje Amerikos Valstijose. Iš gautų kristalinių plokštelių, kurių matmenys yra  $10 \times 10 \times 0.5 \text{ mm}^3$ , buvo išpjauti vienodo dydžio bandiniai, kurie atitiko  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  matmenis. Siekiant užtikrinti gerą elektrinį laidumą, bandinius padengėme indžio alavo oksidu (ITO) ir sidabro pasta. Kristalinius 0.71PMN-0.29PT bandinius poliarizavome kambario temperatūroje, prijungus elektrinį lauką  $[001]$ ,  $[011]$  ir  $[111]$  atitinkamomis kryptimis. Poliarizavimo laukai siekė 2, 3.2 ir 1.6 kV/cm atitinkamai  $\langle 001 \rangle$ ,  $\langle 011 \rangle$  ir  $\langle 111 \rangle$  orientuotiems kristalams.

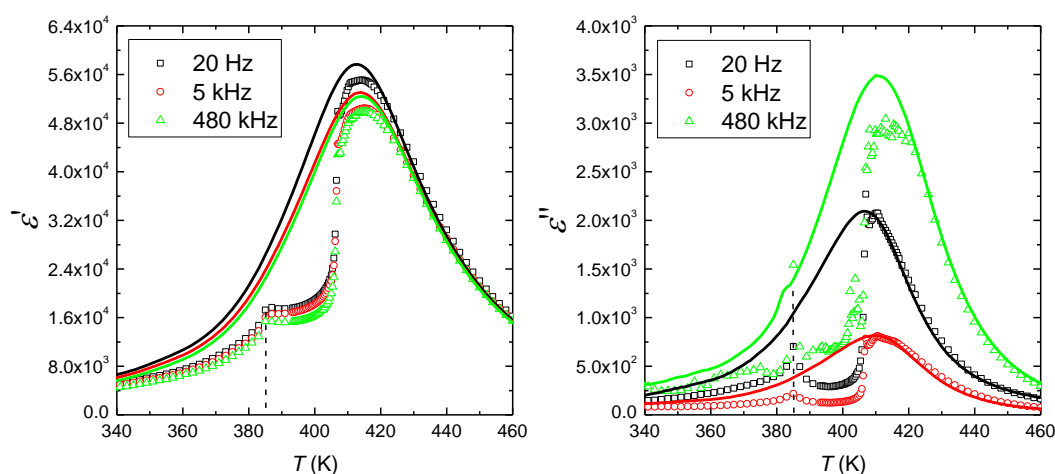
Epitaksinis plonas  $0.67Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-0.33PbTiO_3$  (sutrumpintai 0.67PMN-0.33PT) sluoksnis gamintas pasitelkiant impulsinio lazerinio garinimo metodą ant  $SrTiO_3$  (STO) kristalinio padėklo.  $SrRuO_3$  (SRO) naudotas kaip apatinis ir viršutinis elektrodas. Daugiau apie sluoksnio auginimo sąlygas galima sužinoti čia: [29].

Kompleksinis impedansas ir dielektrinė skvarba matuota nuo 20 Hz iki 1MHz dažnių ir nuo 300 K iki 500 K temperatūrų intervaluose šildymo ir šaldymo cikluose, naudojant HP4284 LCR matuoklį. 0.67PMN-0.33PT sluoksnio feroelektrinės histerezės

kilpos ir dielektrinės skvarbos valdomumas elektriniu lauku buvo tirtas 300 – 450 K temperatūrų intervale ir esant 1 kHz dažniui. Tuo tarpu, 0.71PMN-0.29PT kristaluose piroelektrinis atsakas buvo stebėtas 220 K to 420 K temperatūrų intervale. Pastarieji matavimai atlikti naudojant TF Analyser 2000 (aixACCT) matavimo įrangą.

#### 4.3.1. 0.71Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-0.29PbTiO<sub>3</sub> monokristalo dielektriniai ir piroelektriniai tyrimai

0.71Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-0.29PbTiO<sub>3</sub> (sutrumpintai, 0.71PMN-0.29PT) monokristalo, orientuoto tokiomis kristalografinėmis kryptimis: <001>, <011> ir <111>, dielektrinės skvarbos realios ir menamos dalies temperatūrinės priklausomybės pavaizduotos 23, 24 ir 25 paveikslėliuose tiek šildymo, tiek vėsinimo cikluose.



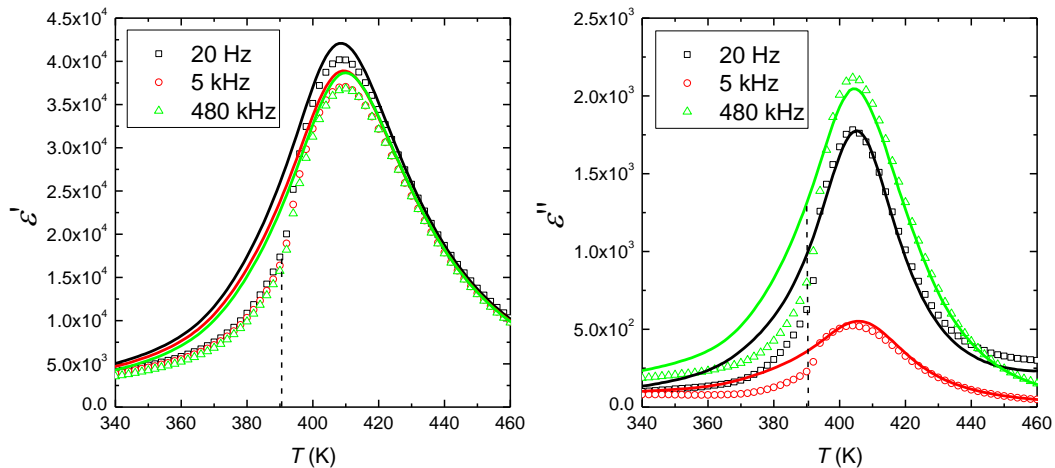
23 pav. 0.71PMN-0.29PT kristalo, orientuoto <111> kryptimi, dielektrinės skvarbos realios ir menamos dalies priklausomybė nuo temperatūros matuojant šildymo (taškai) ir vėsinimo cikluose (išsistinės linijos), bei matuojant 20 Hz – 480 kHz dažnių intervale.

Kaip matome iš 23 paveikslo, šildymo cikle 0.71PMN-0.29PT <111> kryptimi orientuotame monokristale stebimas dielektrinės skvarbos maksimumas ties  $T_c \approx 410$  K, kas reiškia jog stebime fazinį virsmą iš tetragoninės į kubinę struktūrą (T-C). Antra anomalija matoma ties  $T = 380$  K temperatūra. Šią anomaliją galima susieti su faziniu virsmu iš romboedrinės į tetragoninę struktūrą (R-T). Tuo tarpu vėsinimo cikle stebima tik viena dielektrinė anomalija ties 410 K temperatūra. Fazinis virsmas iš romboedrinės į



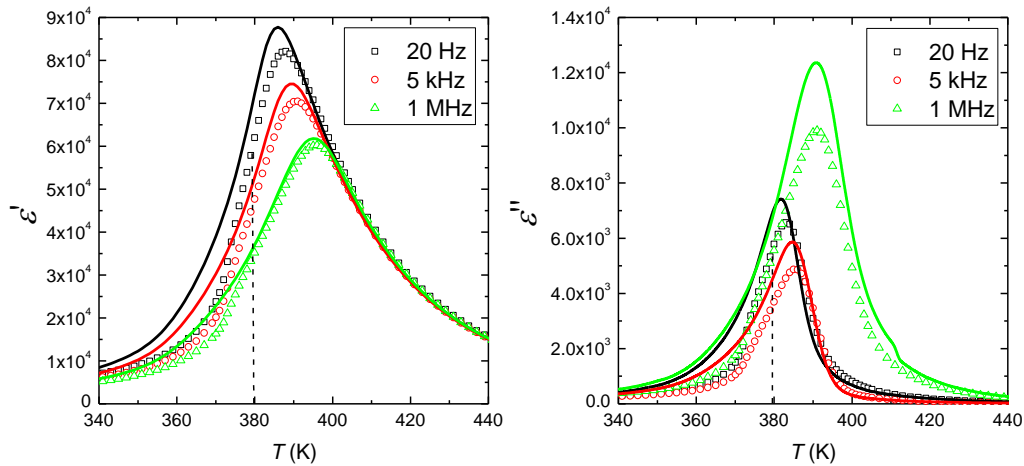
kubinę fazę sukeltų didelius struktūrinius pokyčius, kurie energetiškai yra nenaudingi, todėl stebimas tarpinis fazinis virsmas šildymo cikle.

$\langle 011 \rangle$  kryptimi orientuoto 0.71PMN-0.29PT monokristalo dielektrinės skvarbos priklausomybė nuo temperatūros esant skirtingiems dažniams pavaizduota 24 paveikslėlyje.



24 pav. 0.71PMN-0.29PT kristalo, orientuoto  $\langle 011 \rangle$  kryptimi, dielektrinės skvarbos realios ir menamos dalies priklausomybė nuo temperatūros matuojant šildymo (taškai) ir vėsinimo cikluose (išsistinės linijos), bei matuojant 20 Hz – 480 kHz dažnių intervale.

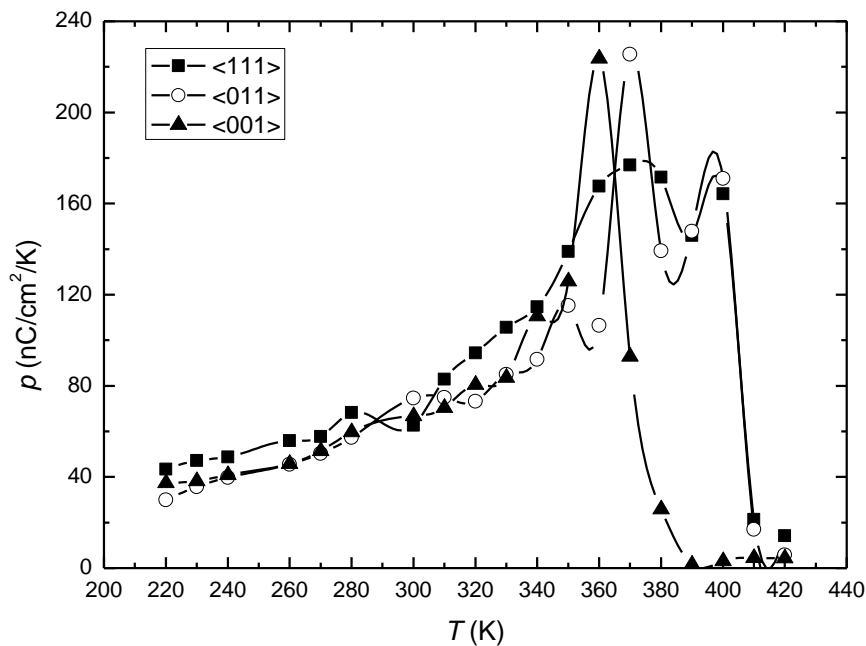
Šildymo cikle realiojoje dielektrinės skvarbos dalyje stebimas tik vienas platus maksimumas ties  $T_C \approx 410$  K temperatūra, kuri galima susieti su T-C faziniu virsmu, taip pat kaip ir  $\langle 011 \rangle$  kryptimi orientuoto kristalo. Šiek tiek žemiau Curie temperatūros matomas staigesnis dielektrinių nuostolių padidėjimas ties 390 K temperatūra. Tai galima susieti su R-T faziniu virsmu. Vėsinimo cikle taip pat stebima tik viena dielektrinės skvarbos anomalija.



25 pav. 0.71PMN-0.29PT kristalo, orientuoto  $\langle 001 \rangle$  kryptimi, dielektrinės skvarbos realios ir menamos dalies priklausomybė nuo temperatūros matuojant šildymo (taškai) ir vėsinimo cikluose (ištisinės linijos), bei matuojant 20 Hz – 480 kHz dažnių intervale.

0.71PMN-0.29PT monokristalo, orientuoto  $\langle 001 \rangle$  kryptimi, dielektrinės skvarbos realios ir menamos dalies temperatūrinės priklausomybės pavaizduotos 25 paveikslėlyje. Dielektrinės skvarbos elgsena yra tokia pati kaip ir  $\langle 011 \rangle$ , bei  $\langle 111 \rangle$  kryptimis orientuotų kristalų tiek šildymo, tiek vėsinimo cikluose. Tačiau, žemiau Curie taško ( $T < T_C$ ) stebima ryški dielektrinės skvarbos dispersija, kurią galima susieti su domenų sienelių dinamika [30, žiūrėti 2 paveikslėlį]. Mūsų atveju, aiškiai matome jog domenų sienelės duoda papildomą indėlį į suminę dielektrinę skvarbą, t.y. dielektrinės skvarbos vertė maksimumo taške padidėja beveik du kartus.

0.71PMN-0.29PT monokristalų, orientuotų tokiomis kristalografinėmis kryptimis:  $\langle 001 \rangle$ ,  $\langle 011 \rangle$  ir  $\langle 111 \rangle$ , piroelektrinio koeficiento eksperimentiniai rezultatai pateikti 26 paveikslėlyje.

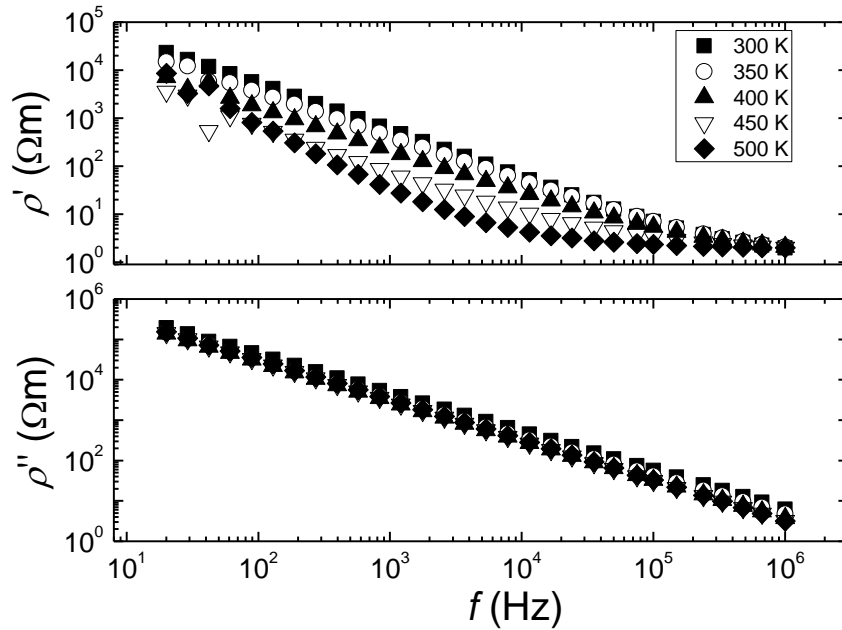


26 pav. 0.71PMN-0.29PT monokristalo orientuoto tokiomis kristalografinėmis kryptimis: <001>, <011> ir <111>, piroelektrinio koeficiento priklausomybė nuo temperatūros. Išsitiesinės linijos vaizduoja eksperimentinių taškų sujungimą.

Kaip matome iš 26 paveikslėlio, piroelektrinis koeficientas praktiškai nepriklauso nuo temperatūros matuojant iki kambario temperatūros (300 K). Toliau didinant matavimo temperatūrą, piroelektrinis koeficientas didėja ir pasiekiamas pirmasis maksimumas ties 370 K, bei ties 400 K temperatūra, matuojant <111> ir <011> kryptimis orientuotus kristalus. Tuo tarpu <001> kryptimi orientuotame kristale stebimas tik vienas piroelektrinio koeficiento maksimumas ties 360 K. Palyginus gautas  $T_c$  vertes iš temperatūrinės piroelektrinio koeficiento priklausomybės ir iš dielektrinių matavimų, pastebėta, jog jos gerai tarpusavyje sutampa.

#### 4.3.2. 0.67Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-0.33PbTiO<sub>3</sub> plono sluoksnio kompleksinio impedanso tyrimai

0.67Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> – 0.33PbTiO<sub>3</sub> (sutrumpintai, 0.67PMN-0.33PT) plono sluoksnio specifinio impedanso realios ir menamos dalies priklausomybė nuo dažnio pateikta 27 paveikslėlyje.



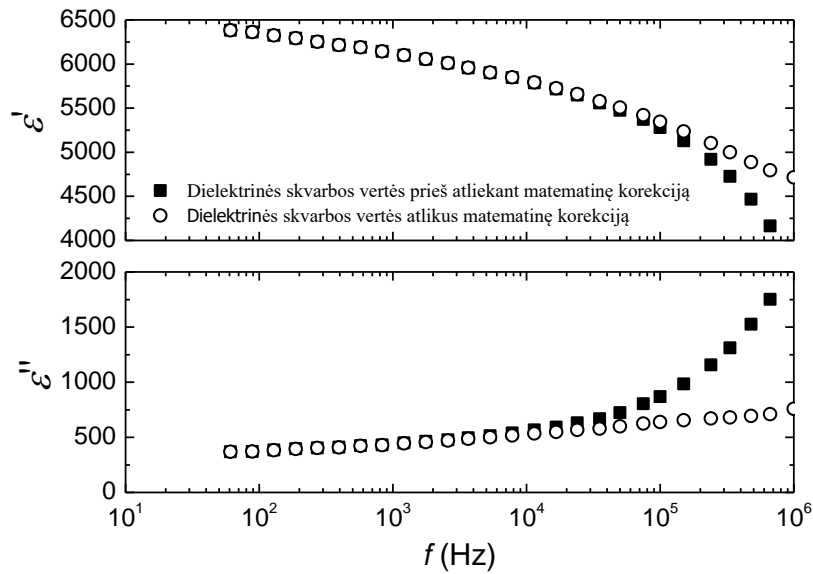
27 pav. Specifinio impedanso realios ir menamos dalies priklausomybė nuo dažnio.

Pastebėta, jog specifinės varžos menamoji dalis pasižymi tiesine priklausomybe logaritminėje skalėje. Tiesės polinkis yra tarp  $-0.95$  ir  $-0.99$  verčių, kas apytiksliai lygu  $-1$ . Remiantis šiuo rezultatu galima teigti, jog kompleksinės specifinės varžos menamoji dalis susijusi su sistemos talpa.

Siekiant išvengti SRO laidumo įtakos atlikome eksperimentinių rezultatų matematinę korekciją. 28 paveikslėlyje pavaizduota kompleksinės dielektrinės skvarbos priklausomybė nuo dažnio prieš ir po matematinės korekcijos. Ši matematinė korekcija atlikta naudojantis lygtimi, kurios dėka sumažinama SRO elektrodo specifinės varžos įtaka į sistemos specifinę varžą.

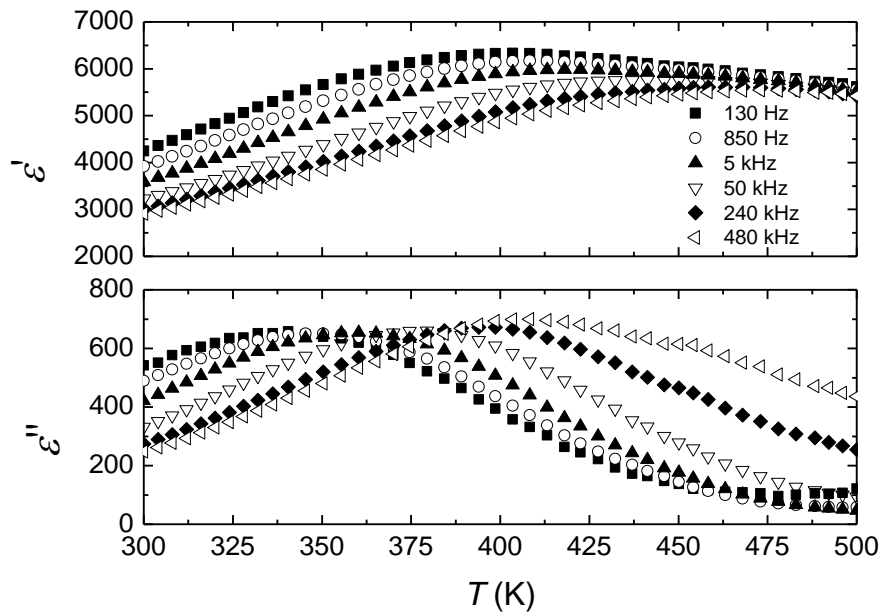
$$\begin{aligned} \rho'_{\text{cor}} &= \rho'_{\text{exp}} - \rho_{\infty} \\ \rho''_{\text{cor}} &= \rho''_{\text{exp}} \end{aligned} \quad (29)$$

čia:  $\rho'_{\text{cor}}$  ir  $\rho''_{\text{cor}}$  atitinka pakoreguotą matuojamos varžos realią ir menamą dalis,  $\rho'_{\text{exp}}$  ir  $\rho''_{\text{exp}}$  yra eksperimentinės realios ir menamos specifinės varžos dalies vertės ir  $\rho_{\infty}$  - aukštadažnė specifinė varža, kuri mūsų atveju lygi  $\rho_{\infty} = 2 \Omega\text{m}$ . Ši vertė gauta eksperimentiniu būdu.



28 pav. Kompleksinės dielektrinės skvarbos priklausomybė nuo dažnio prieš (juodi taškai) ir po (raudoni taškai) matematinės korekcijos.

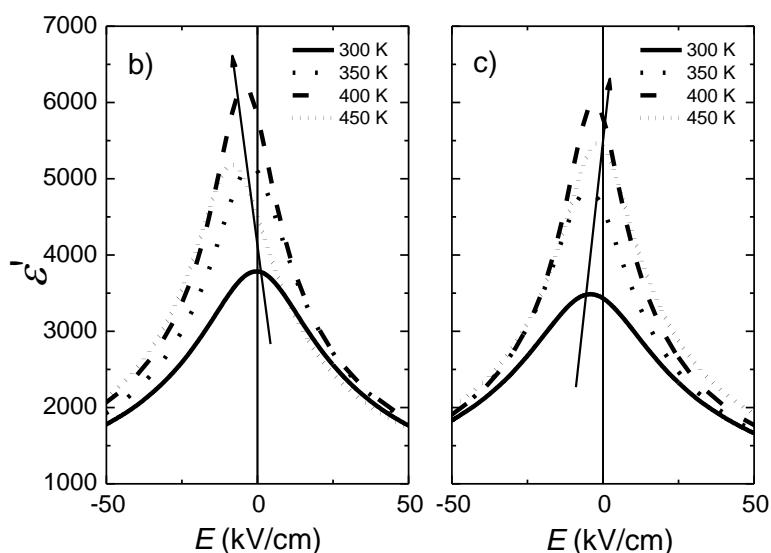
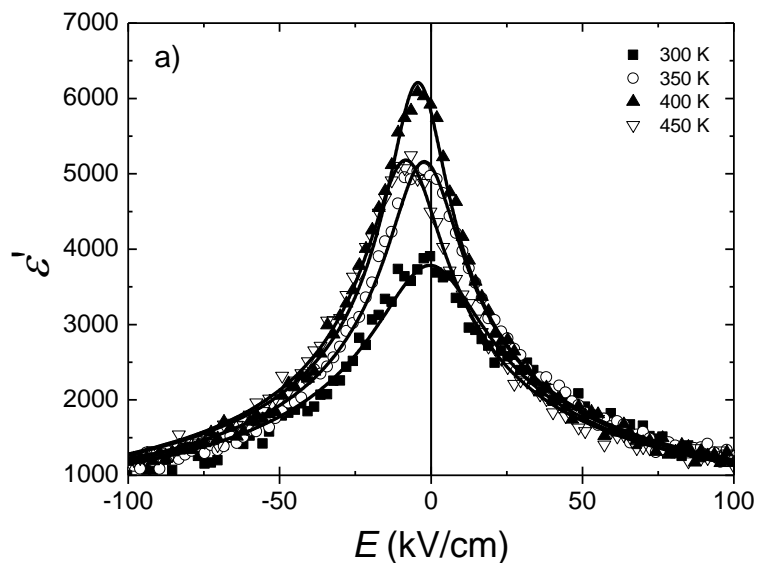
Matematinė eksperimentinių rezultatų korekcija buvo atlikta visame temperatūrų intervale. 0.67PMN-0.33PT plono sluoksnio kompleksinės dielektrinės varžos vertės buvo suskaičiuotos iš kompleksinės specifinės varžos ir gauti rezultatai pateikti 29 paveikslėlyje. Dielektrinės skvarbos realioji dalis pasižymi dviem plačiomis ir persiklojančiomis anomalijomis, kurios pasireiškia ties  $T = 400$  K ir  $T = 480$  K temperatūromis. Stebimas anomalijas galbūt galima susieti su faziniais virsmiais atitinkamai iš romboedrinės į tetragoninę ir iš tetragoninės į kubinę fazę.



29 pav. Koreguotos kompleksinės dielektrinės skvarbos temperatūrinė priklausomybė.

Matuoto 0.67PMN-0.33PT plono sluoksnio dielektrinė konstanta apytiksliai lygi 6000 ties 1 kHz dažniu, kas yra beveik penkis kartus mažiau negu tūrinio 0.67PMN-0.33PT atveju [31, 32]. Plonuose sluoksniuose stebimos dielektrinės skvarbos sumažėjimas ir plokštėjimas gali būti siejamas su dydžio efektu [27].

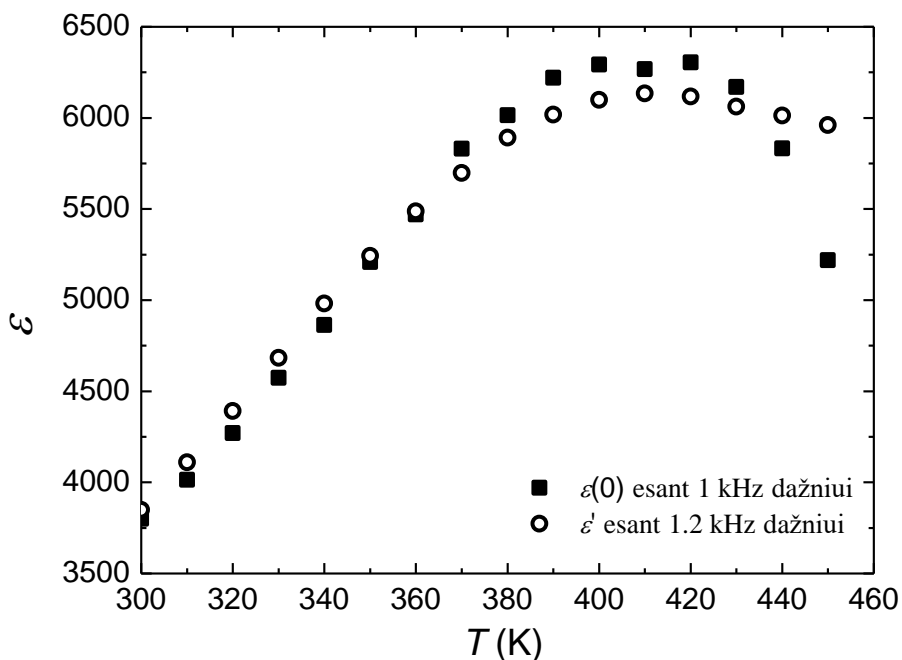
Dielektrinės skvarbos realiosios dalies valdomumas elektriniu lauku pateiktas 30 a) paveikslėlyje, matuojant 300 – 450 K temperatūrų intervale. Kvadratėliai simbolizuoja eksperimentinius taškus, o ištisinės linijos reiškia aproksimaciją naudojant Johnson sąryšiu (žiūrėti 15 išraišką).



30 pav. a) Dielektrinės skvarbos realios dalies valdomumas elektriniu lauku. Kvadratėliai simbolizuoja eksperimentinius taškus, o ištisinės linijos reiškia aproksimaciją naudojant Johnson sąryšiu (žiūrėti 15 išraišką). b) ir c) atitinkamai eksperimentinių taškų aproksimacija naudojant Johnson sąryšį, kai elektrinis laukas kito atitinkamai iš teigiamo į neigiamą ir atvirkščiai.

Tuo tarpu 30 b) ir c) paveikslėliai vaizduoja atitinkamai eksperimentinių taškų aproksimaciją naudojant Johnson sąryšį, kai elektrinis laukas kito iš teigiamo į neigiamą ir atvirkščiai. Matome, jog dielektrinės skvarbos maksimumo pozicija priklauso nuo prijungto elektrinio lauko krypties. Tai gali būti susiję su krūvininkų injekcija iš apatinio

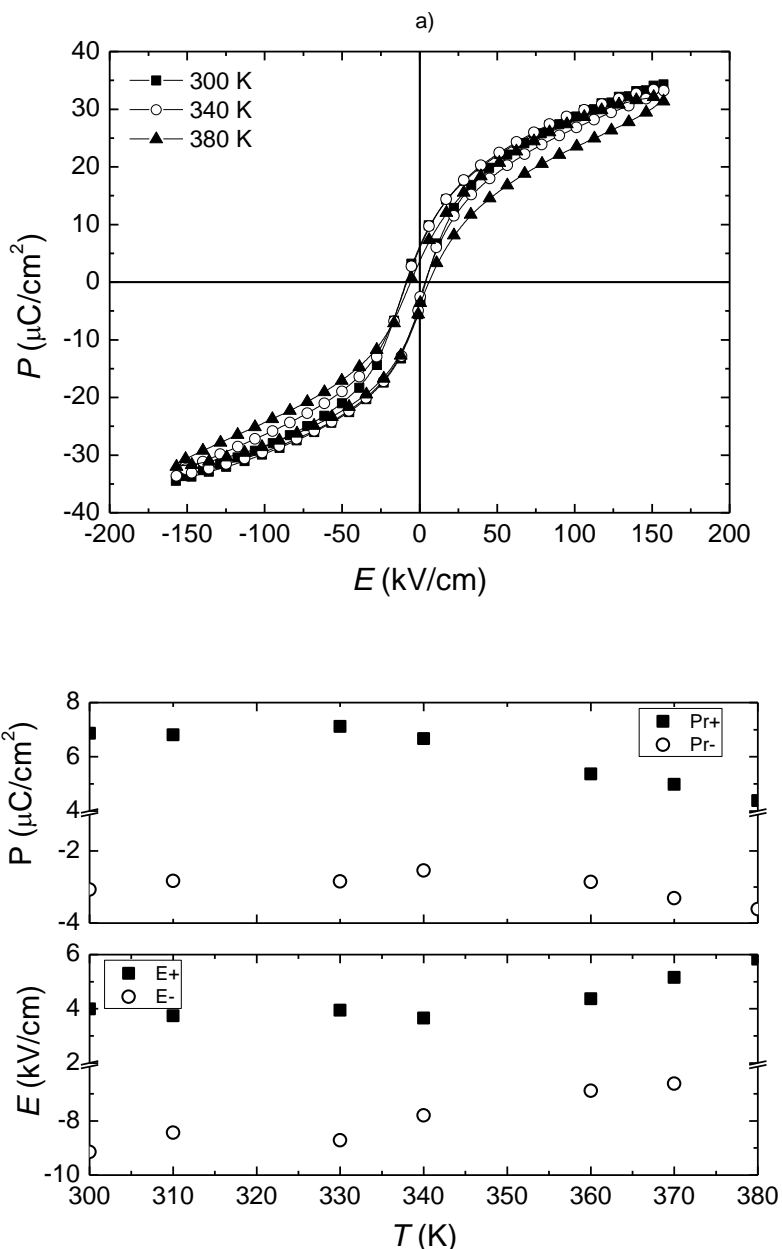
elektrodo. Taip pat pastebėta, jog dielektrinė skvarba sumažėja visame matuojamame temperatūrų intervale daugiau negu 70 % esant išoriniam elektriniam laukui. Dielektrinės konstantos vertė beveik įsisotina, kai elektrinis laukas tampa lygus 100 kV/cm (5 V), todėl tolimesnis dielektrinės konstantos mažėjimas yra menkai tikėtinas.



31 pav. Temperatūrinė dielektrinės skvarbos priklausomybė, gauta naudojantis Johnson aproksimaciją (juodi kvadratėliai) ir koreguotos dielektrinės skvarbos priklausomybė nuo temperatūros (raudoni kvadratėliai).

31 paveikslėlyje pavaizduota dielektrinės skvarbos koreliacija. Čia lyginamos dielektrinės skvarbos vertės gautos iš valdomumo elektriniu lauku, kai elektrinis laukas lygus 0 kV/cm ir iš perskaičiuotos dielektrinės skvarbos temperatūrinės priklausomybės. Dielektrinės skvarbos vertės skiriasi mažiau negu 4 % beveik visame matuojamame temperatūrų intervale. Toki maži dielektrinės skvarbos skirtumai patvirtina eksperimentinių rezultatų patikimumą, nes eksperimentai buvo atlikti su skirtinga matavimo įranga.





32 pav. a) 0.67PMN-0.33PT plono sluoksnio feroelektrinės histerezės kilpos esant skirtingoms temperatūroms. b) Liekamosios teigiamos ir neigiamos poliarizacijos (atitinkamai Pr+ ir Pr-), bei teigiamo ir neigiamo koercinio lauko (atitinkamai E+ ir E-) priklausomybė nuo temperatūros.

32 a) paveikslėlis vaizduoja 0.67PMN-0.33PT plono sluoksnio poliarizacijos- elektrinio lauko (P-E) kilpas, matuotas esant 1 kHz dažniui, kai prijungtas elektrinis laukas siekė iki 150  $\text{kV}/\text{cm}$ . Šiame ploname sluoksnyje ryški histerezinė priklausomybė, kurioje likutinė poliarizacija siekia  $2P_r \approx 10 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  ir koercinis laukas lygus  $2E_c \approx 12 \text{kV}/\text{cm}$  temperatūrų intervale nuo 300 K iki 380 K (žiūrėti 32 b) paveikslėlį).

### 4.4.3. Santrauka

Pristatyti eksperimentiniai  $0.71\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $0.29\text{PbTiO}_3$  monokristalo ir  $0.67\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  –  $0.33\text{PbTiO}_3$  epitaksinio plono sluoksnio rezultatai. Atliekant dielektrinius  $0.71\text{PMN}$ - $0.21\text{PT}$  kristalo matavimus pastebėta, jog šildymo cikluose egzistuoja du faziniai firšmai, t.y. stebima tarpinė fazė, nes tiesioginis viršmas iš romboedrinės fazės į kubinę fazę pareikalautų didelių struktūrinių pokyčių, kurie energetiškai nėra naudingi. Kita vertus, matuojant vėsinimo cikle stebimas tik vienas fazinis viršmas, t.y. tarpinė fazė nėra pastebėta. Taip pat pastebėtas papildomas domenų sienelių indėlis į suminę dielektrinę skvarbą. Dielektrinės skvarbos maksimali vertė padidėjo beveik du kartus matuojant  $\langle 001 \rangle$  kryptimi orientuotą  $0.71\text{PMN}$ - $0.29\text{PT}$  monokristalą. Piroelektrinio atsako dvi maksimalios vertės stebimos tik  $\langle 111 \rangle$  ir  $\langle 011 \rangle$  orientuotuose kristaluose, nes tetragoninėje fazėje poliarizacijos komponentė yra statmena bandinio paviršiui. Tuo tarpu  $\langle 001 \rangle$  orientuotame kristale pasireiškia tik vienas piroelektrinio atsako maksimumas, nes šiuo atveju dominuojanti poliarizacijos komponentė yra lygiagreti bandinio paviršiui.

Atliekant  $0.67\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  –  $0.33\text{PbTiO}_3$  epitaksinio plono sluoksnio impedanso tyrimus pastebėta, jog menamoji specifinės varžos dalis pasižymi tiesine priklausomybe. Taip pat pastebėta, jog specifinio impedanso eksperimentiniai rezultatai yra stipriai įtakojami SRO elektrodo varžos. Tiriant  $0.67\text{PMN}$ - $0.33\text{PT}$  epitaksinius sluoksnius pastebėta, jog dielektrinės skvarbos kreivės plokštėja ir dielektrinės skvarbos vertės sumažėja beveik penkis kartus lyginant su tūrinėmis medžiagomis. Tokia dielektrinės skvarbos elgsena galbūt susijusi su feroelektrinių savybių silpnėjimu dėl dydžio efekto taip pat kaip ir BST plono sluoksnio atveju. Pastebėta jog  $0.67\text{PMN}$ - $0.33\text{PT}$  epitaksinis sluoksnis yra gerai valdoma medžiaga: dielektrinis stipris visose temperatūrose sumažėja daugiau negu 70 % esant prijungtai išorinei įtampai. Dielektrinė konstanta įsisotina esant 100 kV/cm elektriniam laukui ir tolimesnis dielektrinės konstantos mažėjimas yra menkai tikėtinas. Be to, epitaksinis  $0.67\text{PMN}$ - $0.33\text{PT}$  plonas sluoksnis yra geriau elektriškai valdoma medžiaga lyginant su epitaksiniu  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  /  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  //  $\text{SrTiO}_3$  sluoksniu, nes dielektrinės skvarbos valdomumas elektriniu lauku yra stipresnis apie 1.4 karto, bei reikalinga mažesnė įtampa, norint stebėti dielektrinės konstantos įsisotinimą.

## 5. Išvados

Ši disertacija aprašo epitaksinių sluoksnių ir monokristalų eksperimentinius tyrimus. Galima padaryti šias išvadas:

1. Fizikiniu požiūriu plonų dielektrinių sluoksnių modelis, kuriame ryškus apatinio elektrodo varžos pasiskirstymas, teisingai aprašo eksperimentinius rezultatus, skirtingai negu ekvivalentinių grandinių modelis.
2. Gardelės įtempimai įtakoja feroelektrinio fazinio virsmo temperatūrą ir krūvio nešėjų aktyvacijos energiją: padidėja fazinio virsmo temperatūra, o aktyvacijos energija sumažėja, didėjant gardelės įtempimams.
3. BST 70/30 ir 0.67PMN-0.33PT epitaksinių plonų sluoksnių dielektrinės skvarbos vertės yra stipriai sumažėjusios lyginant su jų vertėmis tūrinėse medžiagose: dielektrinės skvarbos kreivės plokštėja – nestebima ryški ir charakteringa dielektrinės skvarbos anomalija.
4. Epitaksiniuose plonuose sluoksniuose stebimas įrašytas elektrinis laukas ir laukas, atsiradęs dėl vidinių įtempimų, nepablogina dielektrinės skvarbos valdomumo elektriniu lauku – visose temperatūrose dielektrinės skvarbos vertės BST 70/30 ir 0.67PMN-0.33PT plonuose sluoksniuose atitinkamai sumažėja daugiau negu 50 % ir 70 %.

## 6. Literatūra

- [1] **C. Kittel**, Theory of the Structure of Ferromagnetic Domains in Films and, Small particles. *Phys. Rev.* 70, 965 (1946): <https://doi.org/10.1103/PhysRev.70.965>
- [2] **W. J. Merz**, Domain Formation and Domain Wall Motions in Ferroelectric BaTiO<sub>3</sub>, Single Crystals. *Phys. Rev.* 95, 690 (1954): <https://doi.org/10.1103/PhysRev.95.690>
- [3] **W. J. Merz**, Domain properties in BaTiO<sub>3</sub>. *Phys. Rev.* 88, 421 (1952): <https://doi.org/10.1103/PhysRev.88.421>
- [4] **Y. L. Wang, Z. B. He, D. Damjanovic, A. K. Tagantsev, G. C. Deng, and N. Setter**, Unusual dielectric behaviour and domain structure in rhombohedral phase of BaTiO<sub>3</sub> single crystals. *J. Appl. Phys.* 110, 014101 (2011): <http://dx.doi.org/10.1063/1.3605494>
- [5] **A. K. Tagantsev, L. E Cross, and J. Fousek**, Domains in Ferroic Crystals and Thin Films. Springer, New York (2010): ISBN 78-1-4419-1416-3
- [6] **G. Burns, F.H. Dacol**, Glassy polarization behavior in ferroelectric compounds Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> and Pb(Zn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>. *Solid State Commun.* 48, 10, 853-856 (1983): [http://dx.doi.org/10.1016/0038-1098\(83\)90132-1](http://dx.doi.org/10.1016/0038-1098(83)90132-1)
- [7] **D. Viehland, S. J. Jang, L. E. Cross and M. Wuttig**, Freezing of the polarization fluctuations in lead magnesium niobate relaxors. *J. Appl. Phys.* 68, 6, 2916-2921 (1990): <http://dx.doi.org/10.1063/1.346425>
- [8] **F. Chu, N. Setter and A. K. Tagantsev**, The spontaneous relaxor-ferroelectric transition of Pb(Sc<sub>0.5</sub>Ta<sub>0.5</sub>)O<sub>3</sub>. *J. Appl. Phys.* 74, 8, 5129-5134 (1993): <http://dx.doi.org/10.1063/1.354300>
- [9] **L. Dagdug**, A theoretical framework for the Vogel–Fulcher–Tammann equation for covalent network glasses derived by the stochastic matrix method. *J. Phys.: Condens. Matter*, 12, 9573 (2000)
- [10] **J. Grigas**, Segnetoelektriniai reiškiniai ir faziniai virsmai, Vilniaus Universitetas, UDK: 539.2(075.8) (1975)
- [11] **J. Grigas**, Microwave Dielectric Spectroscopy of Ferroelectrics. OPA Amsterdam Gordon & Breach Publ. Inc.: (1996)

- [12] **K. S. Cole and R. H. Cole**, Dispersion and Absorption in Dielectrics I. Alternating Current Characteristics. *J. Chem. Phys.* 9, 341 (1941): <http://dx.doi.org/10.1063/1.1750906>
- [13] **D. W. Davidson and R. H. Cole**, Dielectric Relaxation in Glycerol, Propylene Glycol, and n-Propanol. *J. Chem. Phys.* 19, 1484 (1951): <http://dx.doi.org/10.1063/1.1748105>
- [14] **S. Havriliak and S. Negami**, A complex plane analysis of  $\alpha$ -dispersions in some polymer systems. *J. Polym. Sc. C.* 14, 99 (1966): <http://dx.doi.org/10.1002/polc.5070140111>
- [15] **S. Havriliak and S. Negami**, A Complex Plane Representation of Dielectric and Mechanical Relaxation Processes in Some Polymers. *Polymer.*, 8, 161 (1967): [http://dx.doi.org/10.1016/0032-3861\(67\)90021-3](http://dx.doi.org/10.1016/0032-3861(67)90021-3)
- [16] **K. M. Johnson**, Variation of Dielectric Constant with Voltage in Ferroelectrics and Its Application to Parametric Devices. *J. Appl. Phys.* 33, 2826 (1962): <http://dx.doi.org/10.1063/1.1702558>
- [17] **M. E. Drougard, R. Landauer, and D. R. Young**, Dielectric Behavior of Barium Titanate in the Paraelectric State. *Phys. Rev.* 98, 1010 (1955): <https://doi.org/10.1103/PhysRev.98.1010>
- [18] **E. Stern and A. Lurio**, Dielectric Properties of BaTiO<sub>3</sub> Single Crystals in the Paraelectric State from 1 kc/sec to 2000 Mc/sec. *Phys. Rev.* 123, 117 (1961): <https://doi.org/10.1103/PhysRev.123.117>
- [19] **D. C. Sinclair and A. R. West**, Impedance and modulus spectroscopy of semiconducting BaTiO<sub>3</sub> showing positive temperature coefficient of resistance. *J. Appl. Phys.* 66, 8 (1989): <http://dx.doi.org/10.1063/1.344049>
- [20] **R. Martinez, A. Kumar, R. Palai, J. F. Scott and R. S. Katiyar**, Impedance spectroscopy analysis of Ba<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>TiO<sub>3</sub>/La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> heterostructure. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 44, 105302, (8pp) (2011): <http://dx.doi.org/10.1088/0022-3727/44/10/105302>
- [21] **R. Tang, H. Zhou, R. Zhao, J. Jian, H. Wang, J. Huang, M. Fan, W. Zhang, H. Wang and H. Yang**, Dielectric relaxation and polaronic conduction in epitaxial BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub> hexaferrite thin film. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 49, 115305 (6pp) (2016): <http://dx.doi.org/10.1088/0022-3727/49/11/115305>

- [22] **R. Mackevičiūtė, M. Ivanov, Š. Bagdzevičius, R. Grigalaitis, J. Banys**, Electrical model of a thin dielectric film with a bottom electrode of non-negligible distributed resistance. *Ferroelectrics*, 497, 114-125 (2016): <http://dx.doi.org/10.1080/00150193.2016.1165023>
- [23] **R. E. Collin**, *Foundations for Microwave Engineering*, Second Edition, Wiley-IEEE Press (2000): ISBN 978-0-7803-6031-0
- [24] **G. Koster, B.L. Kropman, G.J.H.M. Rijnders, D.H.A. Blank, and H. Rogalla**, Quasi-ideal strontium titanate crystal surfaces through formation of strontium hydroxide. *Appl. Phys. Lett.* 73, 20, 2920 – 2922 (1998): <http://dx.doi.org/10.1063/1.122630>
- [25] **Z.-G. Ban, and S. P. Alpay**, Phase diagrams and dielectric response of epitaxial barium strontium titanate films: A theoretical analysis. *J. Appl. Phys.*, 91, 11 (2002): <http://dx.doi.org/10.1063/1.1473675>
- [26] **S. Bagdzevicius, R. Mackeviciute, M. Ivanov, B. Fraygola, C. S. Sandu, N. Setter, and J. Banys**, Internal electrical and strain fields influence on the electrical tunability of epitaxial  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  thin films. *Appl. Phys. Lett.* 108, 132901 (2016): <http://dx.doi.org/10.1063/1.4944997>
- [27] **Z. Zhao, V. Buscaglia, M. Viviani, M.T. Buscaglia, L. Mitoseriu, A. Testino, M. Nygren, M. Johnsson, and P. Nanni**, Grain-size effects on the ferroelectric behavior of dense nanocrystalline  $\text{BaTiO}_3$  ceramics. *Phys. Rev. B* 70, 024107 (2004): <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.70.024107>
- [28] **J.Q. He, E. Vasco, C.L. Jia, R. Dittmann, and R.H. Wang**, Microstructure of epitaxial  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3/\text{SrRuO}_3$  bilayer films on  $\text{SrTiO}_3$  substrates. *J. Appl. Phys.* 97(10), 104907 (2005): <http://dx.doi.org/10.1063/1.1897067>
- [29] **M. Boota, E. P. Houwman, M. Dekkers, M. Nguyen, and G. Rijnders**, Epitaxial  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$  (67/33) thin films with large tunable self-bias field controlled by a  $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$  interfacial layer. *Appl. Phys. Lett.* 104, 182909 (2014): <http://dx.doi.org/10.1063/1.4874978>
- [30] **B. L. Cheng, M. Gabbay, M. Maglione, Y. Jorand, and G. Fantozzi**, Domain Walls Motions in Barium Titanate Ceramics. *J. Phys. IV.* 6, C8 (1996): <https://doi.org/10.1051/jp4:19968139>
- [31] **C.B. DiAntonio, F.A. Williams, S.M. Pilgrim, W.A. Schulze**, Characterization study of the growth and electromechanical properties of 67PMN-33PT single crystals.

Proceedings of the 13th IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics, 2002. ISAF 2002: <https://doi.org/10.1109/ISAF.2002.1195960>

[32] **M. Pham-Thi, C. Augier, H. Dammak, P. Gaucher**, Fine grains ceramics of PIN–PT, PIN–PMN–PT and PMN–PT systems: Drift of the dielectric constant under high electric field. *Ultrasonics* 44, e627–e631 (2006): <http://dx.doi.org/10.1016/j.ultras.2006.05.017>

## 7. Rūtos Mackevičiūtės trumpas gyvenimo aprašymas

### Asmeninė informacija

Adresas: Birželio 23-osios 8 - 58, Vilnius, Lietuva

Mobilus telefonas: +370 65671495

Elektroninis paštas: ruta.mackeviciute@ff.vu.lt

Gimimo data: 1989 01 19

### Išsilavinimas

- 2013 – 2017

Vilniaus Universitetas Vilnius, Lietuva

**Fizikos krypties doktorantūros studijos.** Disertacijos tema: “Plonų feroelektrinių sluoksnių ir nanodarinių elektrinių savybių tyrimai”.

- 2011 – 2013

Vilniaus Universitetas Vilnius, Lietuva

**Įgytas laipsnis: Magna Cum Laude Elektronikos inžinerijos magistro laipsnis**

- 2007 – 2011

Vilniaus Universitetas Vilnius, Lietuva

**Įgytas laipsnis: Elektronikos inžinerijos bakalauro laipsnis**

- 2010

Universita Degli Studi Di Padova Padova, Italija

**Erasmus studies**

### Akademinė darbo patirtis:

- Liepa/2015 – Vasaris/2016

**Vilniaus Universitetas, Fizikos fakultetas, Radiofizios katedra**

Inžinierė

- Liepa/2013 – Birželis/2015

**Vilniaus Universitetas, Fizikos fakultetas, Radiofizios katedra**

Jaunesnioji mokslo darbuotoja

- Spalis/2010 – Liepa/2015

**Vilniaus Universitetas, Fizikos fakultetas, Radiofizios katedra**

Laborantė