



**HAL**  
open science

## Matériaux ferroélectriques dans les dispositifs hyperfréquences : Quelles caractérisations ?

Raphaël Renoud, Caroline Borderon, Mostafa Ragheb, Hartmut Gundel

► **To cite this version:**

Raphaël Renoud, Caroline Borderon, Mostafa Ragheb, Hartmut Gundel. Matériaux ferroélectriques dans les dispositifs hyperfréquences : Quelles caractérisations ?. 12ième Journées de Caractérisation Microondes et Matériaux - JCMM 2012, Mar 2012, Chambéry, France. hal-01091851

**HAL Id: hal-01091851**

**<https://hal.science/hal-01091851>**

Submitted on 7 Dec 2014

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## MATERIAUX FERROELECTRIQUES DANS LES DISPOSITIFS HYPERFREQUENCES : QUELLES CARACTERISATIONS ?

R. Renoud, C. Borderon, M. Ragheb, H.W. Gundel  
 IETR, Université de Nantes, 44322 Nantes, France  
 raphael.renoud@univ-nantes.fr

### 1 INTRODUCTION

Les matériaux ferroélectriques en couches minces présentent un intérêt croissant pour les applications hyperfréquences du fait de leur forte valeur de permittivité et de leur accordabilité en champ électrique. Cette dernière grandeur est à la base de dispositifs dits « intelligents », comme par exemple des filtres, des déphaseurs ou des antennes, et de nombreuses réalisations ont déjà été mises au point par diverses équipes de recherche ou industrielles.

Généralement, on teste la performance du matériau ferroélectrique utilisé en mesurant son accordabilité et quelques fois sa figure de mérite. Le matériau retenu pour le dispositif est alors celui présentant la meilleure accordabilité. En dehors de ce résultat immédiat, il n'est accordé que peu d'attention à la physique particulière des ferroélectriques. Il est pourtant fondamental de bien en comprendre les propriétés si l'on souhaite pouvoir tirer le meilleur parti de ces matériaux ou simplement éviter certains désagréments lors de leur utilisation.

Dans cette étude, nous allons montrer l'intérêt que peut revêtir une caractérisation poussée des ferroélectriques en indiquant notamment les expériences indispensables pour garantir d'avoir un bon matériau. Une attention particulière est portée à la spectroscopie diélectrique, notamment aux basses fréquences pour dépister la diffusion, à l'étude en amplitude et aux cycles  $\varepsilon$ - $E$ .

### 2 METHODES DE CARACTERISATION

#### 2.1 Spectroscopie d'impédance

Les ferroélectriques utilisés dans les dispositifs hyperfréquences le sont généralement pour leur accordabilité sous champ électrique (champ de polarisation). Cette propriété correspond à la modification de la valeur de la permittivité du matériau lorsque le champ de polarisation, continu, qui lui est appliqué varie. De fait, tout ce qui se rapporte à l'accordabilité n'est pas du domaine des hyperfréquences mais de celui relatif au temps d'application d'une valeur donnée du champ de polarisation, soit en fait du domaine des très basses fréquences, voire du continu. Il est donc primordial de bien connaître les propriétés du matériau utilisé dans cette gamme de fréquences.

La spectroscopie d'impédance permet d'obtenir le comportement en fréquence du matériau. On peut voir sur la figure 1-a un comportement typique d'un ferroélectrique [1] sur une large gamme de fréquences (huit décades dans cet exemple obtenu sur une couche mince de PZT). On observe une relaxation centrée autour de 10 kHz environ. Il est généralement admis que la relaxation observée est celle des parois de domaine [2-3]. Il est possible d'ajuster la permittivité relative ainsi que les pertes diélectriques par une loi de type Cole-Cole. Le diagramme d'Argand correspondant ( $\varepsilon' = f(\varepsilon'')$ ) : figure 1-b) décrit bien un arc de cercle comme attendu [4].

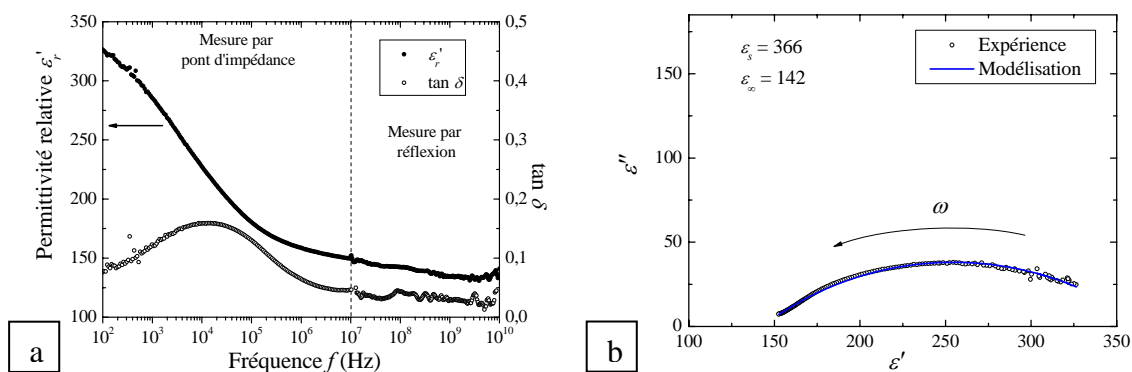


Figure 1 : Évolution type de la permittivité relative et des pertes du PZT en fonction de la fréquence  $f$  (a).  
 Diagramme d'Argand correspondant (b)

Pour certains matériaux, le diagramme d'Argand montre aux basses fréquences une droite révélatrice de conduction et/ou de diffusion [4]. La figure 2-a montre un exemple particulièrement

marqué de ce phénomène. Il est alors possible de soustraire de la permittivité réelle  $\varepsilon'$  et des pertes  $\tan \delta$  la part liée à la diffusion. La figure 2-b permet de comparer ces deux grandeurs avec et sans la contribution de la diffusion. On peut constater que la présence de cette dernière conduit à une augmentation très importante de  $\varepsilon'$  et de  $\tan \delta$  dans la gamme des fréquences inférieures à la fréquence de relaxation. On pourrait se féliciter de cette augmentation de la valeur de la permittivité bien que celle-ci n'est pas attachée à une propriété intrinsèque du matériau. Il faut cependant se garder d'un tel comportement car la diffusion est liée au vieillissement et au claquage du matériau [5], soit donc à la dégradation des propriétés diélectriques, voire à la destruction partielle ou totale du matériau.

Pour conclure, il apparaît que la caractérisation du matériau aux basses fréquences (typiquement en dessous de la fréquence de relaxation des parois de domaine) est indispensable pour détecter une éventuelle diffusion. La présence de celle-ci indique un vieillissement prématuré du matériau ainsi qu'une forte probabilité de claquage ce qui, en définitive, donne un dispositif résistant mal à l'épreuve du temps.

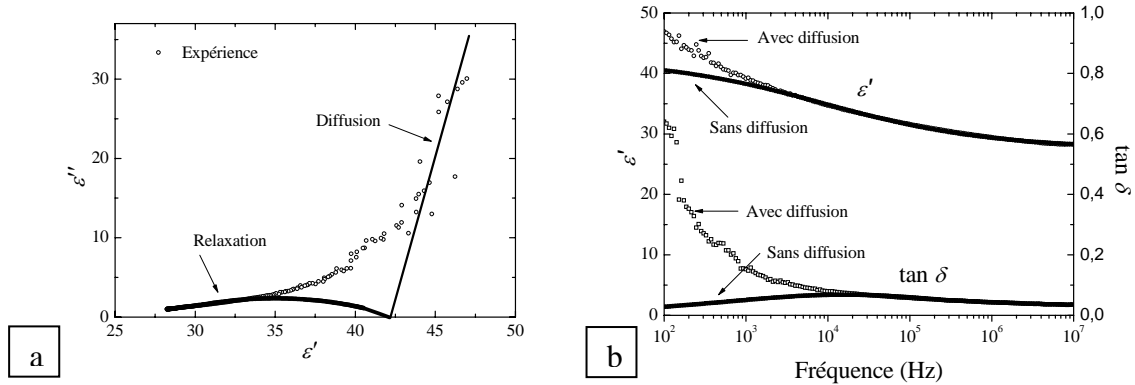


Figure 2 : Exemple de ferroélectrique présentant une forte diffusion : diagramme d'Argand (a) permittivité et pertes avec et sans la part de la diffusion (b)

## 2.2 Etude en amplitude

Les études en amplitude permettent de connaître la réponse du matériau en fonction de l'amplitude du champ électrique exciteur  $E_{exc}$ . On peut voir sur la figure 3 le comportement typique d'un ferroélectrique. Les processus microscopiques mis en jeu correspondent aux vibrations et aux sauts des parois de domaine. Nous avons montré récemment que, dans le cadre des petits signaux, le comportement de la permittivité (réelle et imaginaire) en fonction de l'amplitude du signal exciteur suit une loi hyperbolique [6-7] :

$$\varepsilon = \varepsilon_{bulk} + \sqrt{\varepsilon_{rev}^2 + \varepsilon_{irrev}^2} = \varepsilon_{bulk} + \sqrt{\varepsilon_{rev}^2 + \alpha^2 E_{exc}^2} \quad (1)$$

$\varepsilon_{rev}$  note la contribution de la vibration des parois de domaine,  $\varepsilon_{irrev}$  celle des sauts de parois. Ainsi, il apparaît que la permittivité et les pertes (et donc l'accordabilité et la figure de mérite) dépendent de l'amplitude du champ exciteur. Il est donc impératif de bien connaître la valeur de cette dernière grandeur lors de la caractérisation.

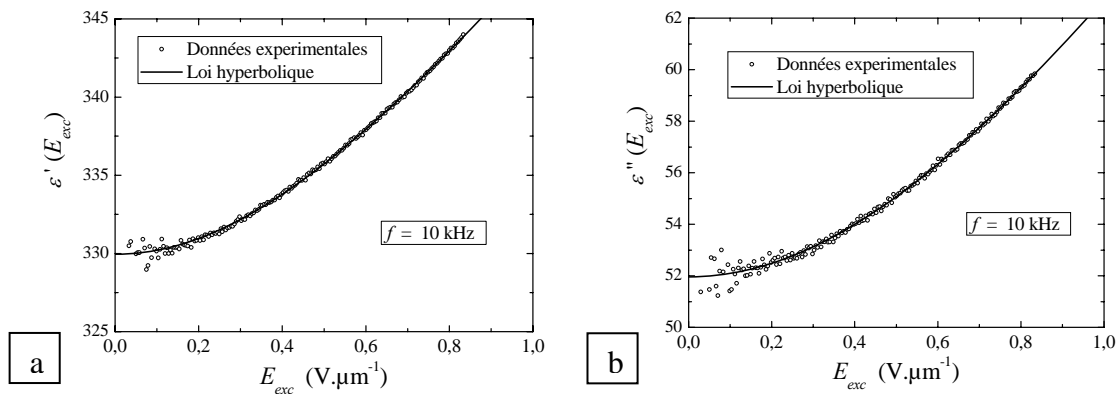


Figure 3 : Loi hyperbolique pour la permittivité réelle (a) et imaginaire (b) de PZT

Le paramètre  $\alpha$  qui intervient dans l'équation (1) varie de façon inversement proportionnelle à la densité des pièges présents dans le matériau [8]. Il augmente également avec la taille des grains [8,3]. Ce paramètre peut être perçu comme révélateur d'une bonne qualité du matériau. Ainsi, même si pour une excitation hyperfréquence on se trouve bien au dessus de la fréquence de relaxation des parois de

domaine et que ces dernières ne jouent alors pratiquement aucun rôle, une grande valeur de  $\alpha$  correspond à une grande possibilité de mouvement des parois notamment lors du passage d'une valeur du champ de polarisation à une autre. On obtient alors une grande variabilité pour la valeur de la permittivité. Comme le paramètre  $\alpha$  lié aux pertes augmente généralement moins vite que celui intervenant dans la permittivité, non seulement l'accordabilité sera meilleure pour  $\alpha$  grand mais la figure de mérite également. On observe par exemple une augmentation d'un facteur 10 de la valeur de  $\alpha$  entre un échantillon de BST et un de PZT pour des accordabilités d'environ 30 % à environ 50 % respectivement [3].

Un autre intérêt de l'étude en amplitude réside dans le fait que l'on puisse décomposer la réponse du matériau en trois parts liées chacune à un processus microscopique précis : ions, vibrations des parois de domaine, sauts de ces dernières. Pour la réponse en fréquence, on peut noter que chaque composante répond à une loi de type Cole-Cole [7]. Ceci permet en particulier d'accéder à l'énergie d'activation des défauts dans les processus de sauts de parois et non à l'énergie d'activation apparente obtenue sans cette précaution [9]. Chaque composante présente également un temps de relaxation propre. En particulier, le temps de relaxation des parois de domaine est beaucoup plus long que celui des deux autres contributions [7]. Dans l'exemple des échantillons de PZT utilisés pour les figures 1 et 3, la relaxation des sauts de parois est de l'ordre de la milliseconde alors qu'elle est seulement de 0,1 ms pour les deux autres processus. Cela signifie de le réarrangement des parois de domaine (et donc la valeur de la permittivité) peut être long lorsque l'on change la valeur du champ de polarisation. Cette valeur est d'ailleurs d'autant plus longue que  $\alpha$  est faible [3].

### 2.3 Cycles $\epsilon' - E$ et $\epsilon'' - E$

L'accordabilité est une propriété liée à la présence des parois de domaine, leur densité notamment. On mesure généralement l'accordabilité et la figure de mérite à partir de cycles permittivité – champ électrique (cycles  $\epsilon' - E$  et  $\epsilon'' - E$ ). La loi hyperbolique permet de décomposer ce cycle en trois contributions (ions  $\epsilon_{bulk}$ , vibrations des parois  $\epsilon_{vib}$  et sauts de ces parois  $\epsilon_{saut} = \alpha E_{exc}$ ). On a reporté sur les figures 4 un exemple de cette décomposition pour un échantillon de PZT comportant peu de défauts (PZT/RuO<sub>2</sub>/i) et pour un PZT présentant de nombreuses lacunes d'oxygène (PZT/i) [3,10].

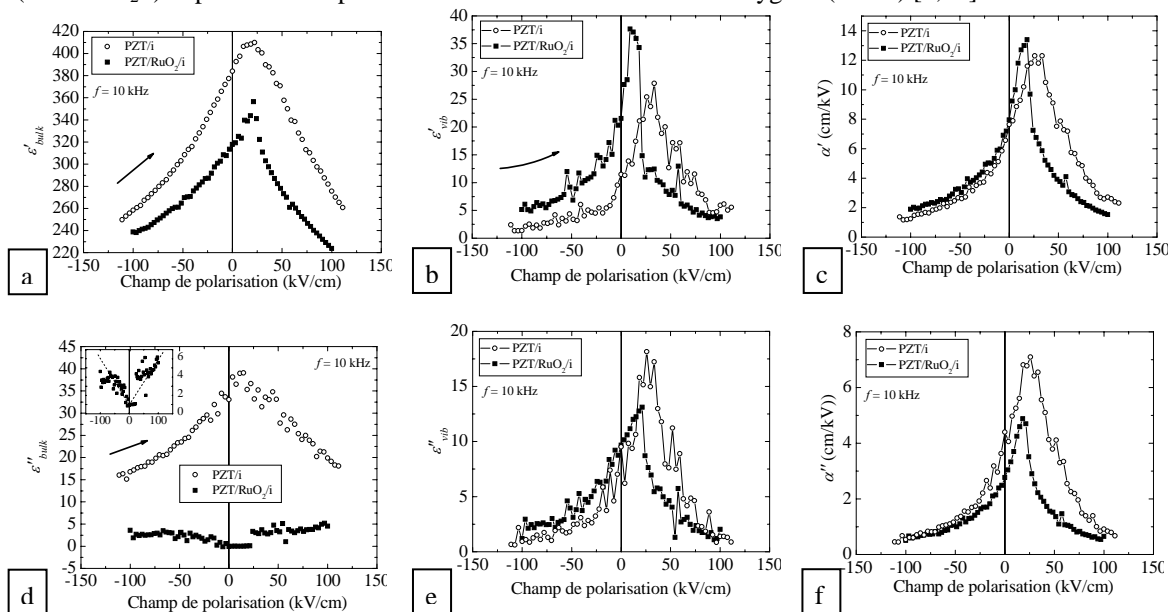


Figure 4 : Décomposition du cycle  $\epsilon' - E$  pour PZT en contributions des ions (a), des vibrations (b) et des sauts de parois (c).

Même décomposition pour le cycle  $\epsilon'' - E$  en contributions des ions (d), des vibrations (e) et des sauts de parois (f).

Les deux échantillons présentés ici ont une accordabilité à peu près identique (35 % sous 100 kV/cm (figure (4-a)) car il s'agit du même matériau déposé sur des substrats différents. Les deux matériaux possèdent d'ailleurs un coefficient  $\alpha'$  très similaire (figure (4-c)). On note cependant que les pertes sont beaucoup plus importantes pour PZT/i que pour PZT/RuO<sub>2</sub>/i (figure (4-d)). Pour PZT/RuO<sub>2</sub>/i, ces pertes sont principalement liées au mouvement des parois de domaine (figures 4-d, 4-e et 4-f) et représentent typiquement près de 80 % du total, voire plus selon la valeur du champ exciteur  $E_{exc}$ . Ainsi, outre la réduction des pertes extrinsèques au matériau dues par exemple à la présence de défauts, il serait intéressant de pouvoir également diminuer les pertes liées au mouvement des parois de domaine.

Il est possible d'apprécier l'importance des pertes liées au mouvement des parois en étudiant le rapport des parties imaginaires et des parties réelles de chaque contribution (figure 5) [3]. On remarque

que ce rapport est très sensible à la densité de défauts présents dans le matériau et qu'il est d'autant plus élevé que celle-ci est importante. Les défauts accrochent les parois et il faut fournir une énergie d'autant plus grande pour bouger les parois que celles-ci sont fortement accrochées. Les pertes varient ainsi en conséquence. Même si les sauts contribuent fortement à la permittivité, et donc à l'accordabilité du matériau, ils génèrent des pertes beaucoup plus importantes. L'accordabilité du matériau est ainsi plus grande pour les grandes valeurs de  $E_{exc}$ , mais la figure de mérite diminue avec  $E_{exc}$ . Il est donc en fait plus intéressant avec de faibles amplitudes du champ exciteur afin que les parois effectuent des vibrations plutôt que des sauts générateurs de pertes [3,7].

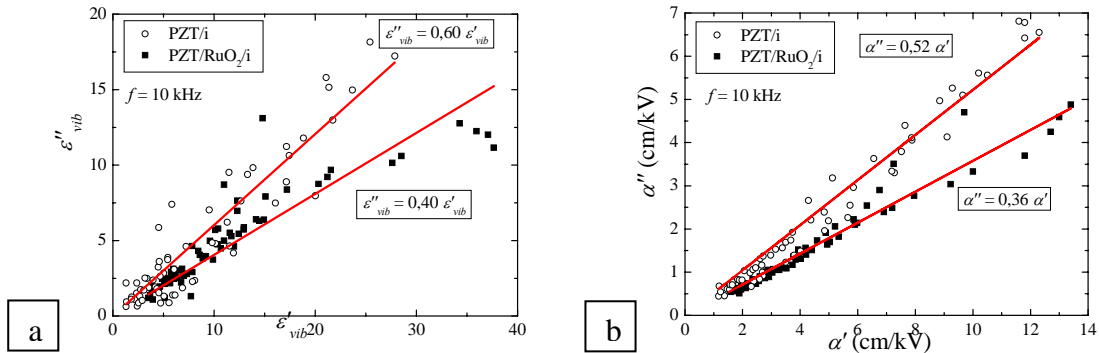


Figure 5 : Rapport des permittivités imaginaire et réelle pour les vibrations (a) et pour les sauts (b) pour PZT

### 3 CONCLUSION

L'utilisation optimale d'un matériau ferroélectrique dans les dispositifs hyperfréquences nécessite une bonne connaissance de ses propriétés électriques, ce qui demande de savoir conduire des caractérisations appropriées y compris aux basses fréquences. La loi hyperbolique constitue alors un outil permettant d'une part de connaître la qualité du matériau en termes d'accordabilité et de figure de mérite et d'autre part de séparer les contributions des différents processus intervenants dans la permittivité et les pertes. Au-delà des caractérisations elles-mêmes, ces outils permettent de cerner de mieux en mieux les propriétés fondamentales des ferroélectriques et, de là, d'entrevoir les solutions à mettre en œuvre pour améliorer les performances de ces matériaux pour les applications hyperfréquences.

### 4 REFERENCES

- [1] C. Borderon, D. Averty, R. Renoud, H.W. Gundel, « Caractérisation diélectrique de couches minces de PZT », *proceeding JCMM 2010* (Brest)
- [2] G. Arlt, N.A. Pertsev, « Force constant and effective mass of 90° domain walls in ferroelectrics ceramics », *Journal of Applied Physics*, vol. 70 (4) (1991) 2283-2289
- [3] C. Borderon, « Développement et étude des matériaux ferroélectriques accordables en vue d'une application pour des antennes intelligentes », *Thèse de doctorat, Université de Nantes* (2008)
- [4] R. Coelho, B. Aladenize, « Les diélectriques : Propriétés diélectriques des matériaux isolants », Ed. Hermès, Paris (1993) p. 143
- [5] C. Bonnelle, G. Blaise, C. Le Gressus, D. Tréheux « Les isolants : Physique de la localisation des porteurs de charge. Applications aux phénomènes d'endommagement », Ed. Lavoisier, Paris (2010)
- [6] C. Borderon, R. Renoud, M. Ragheb, H.W. Gundel, « Description of the low field nonlinear dielectric properties of ferroelectric and multiferroic materials », *Applied Physics Letters*, vol. 98 (11) (2011) 112903
- [7] R. Renoud, C. Borderon, H.W. Gundel, « Measurement and Modeling of Dielectric Properties of Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> Ferroelectric Thin Films », *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, vol. 58 (9) (2011) 1975
- [8] O. Boser « Statistical theory of hysteresis in ferroelectrics materials », *Journal of Applied Physics*, vol. 62 (4) (1987) 1344-1348
- [9] R. Renoud, C. Borderon, H.W. Gundel, « Domain wall contribution to the dielectric properties of ferroelectrics thin layers », *proceeding EMF 2011* (Bordeaux)
- [10] R. Renoud, C. Borderon, M. Ragheb, H.W. Gundel « Dielectric properties of PZT thin films under a low ac-electric field at different bias fields », *proceeding ISIF 2011* (Cambridge)