



**HAL**  
open science

## Etude de la réponse d'un matériau ferroélectrique soumis à un champ électrique de faible amplitude

Caroline Borderon, Raphaël Renoud, Dominique Averty, Hartmut Gundel

### ► To cite this version:

Caroline Borderon, Raphaël Renoud, Dominique Averty, Hartmut Gundel. Etude de la réponse d'un matériau ferroélectrique soumis à un champ électrique de faible amplitude. 8èmes Journées Couches Minces Ferroélectriques - JCF 2007, Oct 2007, Calais, France. hal-01091887

**HAL Id: hal-01091887**

**<https://hal.science/hal-01091887>**

Submitted on 23 Jan 2023

**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.

## Étude de la réponse d'un matériau ferroélectrique soumis à un champ électrique de faible amplitude

C. Borderon, R. Renoud, D. Averty, H.W. Gundel

Université de Nantes, Nantes Atlantique Universités, IREENA, EA 1770,  
 Faculté des Sciences et des Techniques, 2 rue de la Houssinière - BP 92208, Nantes, F44322

Courriel : caroline.borderon@univ-nantes.fr

### Introduction

Les matériaux ferroélectriques sont aujourd'hui très largement étudiés pour leur permittivité élevée et accordable en tension, permettant d'envisager l'utilisation de ses matériaux pour des dispositifs hyperfréquences [1]. Ces applications nécessitent de connaître les caractéristiques des matériaux employés, c'est à dire l'évolution de la permittivité  $\epsilon_r'$  et des pertes  $\tan \delta$  en fonction du champ continu appliqué [2, 3], de la fréquence [2, 4] du champ électrique de mesure utilisé mais aussi de l'amplitude de ce champ excitateur.

La permittivité d'un matériau est couramment calculée à partir de la capacité d'un condensateur plan mesurée à l'aide d'une tension excitatrice de faible amplitude. Pour un diélectrique classique, la valeur de l'amplitude de la tension excitatrice n'a pas d'influence sur la permittivité et les pertes du matériau alors que pour un matériau ferroélectrique, ces deux grandeurs suivent une évolution linéaire en fonction de celle-ci. Cette variation est interprétée, par analogie avec les matériaux ferromagnétiques, au moyen de la loi de Rayleigh [5, 6].

Dans la présente étude, la réponse de couches minces de  $\text{PbZr}_{0,57}\text{Ti}_{0,43}\text{O}_3$  (PZT) soumise à l'effet d'un champ électrique excitateur est analysée pour une fréquence de 10 kHz et une amplitude variant de 0 à 4 kV/cm. Le modèle de Rayleigh n'étant pas complètement adapté aux matériaux ferroélectriques, nous proposons de lui substituer un modèle diélectrique plus élaboré.

### Evolution de la permittivité en fonction du champ excitateur

L'évolution de la permittivité relative en fonction d'un champ continu dépend de l'amplitude du champ électrique excitateur  $E_{exc}$  (Fig. 1). La permittivité est d'autant plus grande que le champ électrique est élevé et ceci de façon plus marquée pour un champ continu égal au champ coercitif. L'accordabilité obtenue est de 29,4% pour  $E_{exc} = 0,1$  kV/cm (27 mV) contre une accordabilité de 31,7% pour  $E_{exc} = 3$  kV/cm (810 mV).

Le modèle de Rayleigh décrit le comportement de matériaux contenant des interfaces dont le mouvement donne naissance à un phénomène d'hystérésis. Dans le cas des matériaux ferroélectriques, ces interfaces sont associées aux parois de domaine [7] dont la position varie sous l'action d'un faible champ électrique alternatif et modifie ainsi la valeur de la permittivité (Fig. 2). Selon le modèle de Rayleigh, la permittivité suit alors la loi [5, 6] :

$$\epsilon_r'(E_{exc}) = \epsilon_r'(0) + \alpha' E_{exc} \quad (1)$$

où  $\epsilon_r'(0)$  est la permittivité relative du matériau pour un champ électrique alternatif nul et  $\alpha'$  le paramètre de Rayleigh représentant l'influence de la vibration des parois de domaine [7]. La formule de Rayleigh n'est applicable que pour de faibles champs ( $E_{exc} < 0,5 E_c$  [7]). La variation de polarisation associée est aussi décrite par la formule semi empirique de Rayleigh [5, 7, 8] :

$$P_{diel}(t) = (\epsilon_r'(0) + \alpha' E_{exc})E(t) \pm \frac{\alpha'}{2}(E_{exc}^2 - E(t)^2) \quad (2)$$

Cette formule permet de décrire les cycles mineurs de polarisation associés à la variation de la permittivité. Le signe « + » est relatif à la branche inférieure du cycle, le signe « - » à la branche supérieure. Ce modèle semi empirique a été validé par Néel [9] pour des distributions aléatoires d'énergie de parois de domaine pour les matériaux ferromagnétiques. Cependant, l'équation (2) décrivant la variation de la polarisation n'est pas définie aux extrémités du cycle (points anguleux). De plus, aucune étude, à notre connaissance, n'a porté sur la dépendance des coefficients de Rayleigh ( $\epsilon_r'(0)$ ,  $\alpha'$ ) en fonction de l'état de polarisation du matériau. Ceux-ci ont pourtant une évolution différente selon que le matériau se situe à saturation ou proche du champ coercitif (Fig. 2).

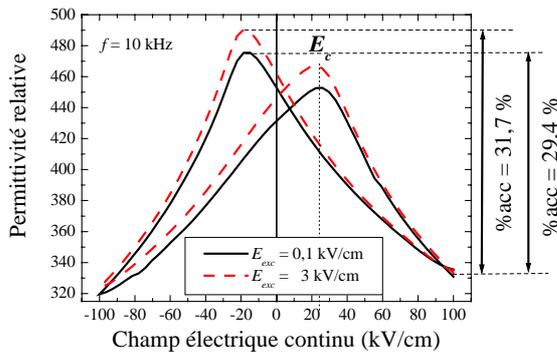


Fig. 1 : Évolution de la permittivité relative du  $\text{PbZr}_{0,57}\text{Ti}_{0,43}\text{O}_3$  en fonction du champ électrique appliqué pour deux amplitudes de champ exciteur.

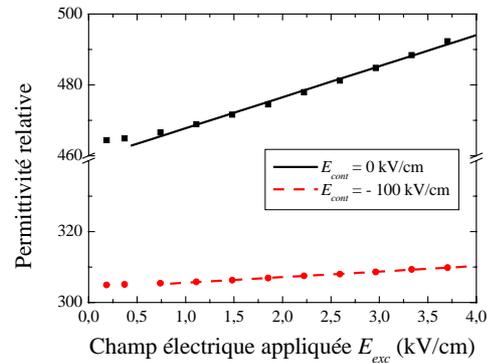


Fig. 2 : Évolution linéaire de la permittivité relative du  $\text{PbZr}_{0,57}\text{Ti}_{0,43}\text{O}_3$  en fonction de l'amplitude du champ exciteur pour deux valeurs du champ électrique continu appliqué.

## Modèle diélectrique d'un matériau ferroélectrique

Le modèle proposé s'appuie sur le comportement diélectrique des matériaux ferroélectriques soumis à un champ de faible amplitude. Dans ce domaine, ils obéissent à l'équation d'un diélectrique classique, dont l'équation est de type Rayleigh (avec un  $\pm$  décrivant deux branches distinctes), mais qui ne présente pas de points anguleux aux extrémités du cycle :

$$P(t) = \varepsilon_0 \varepsilon_r' E(t) \pm \varepsilon_0 \varepsilon_r'' \sqrt{E_{exc}^2 - E^2(t)}. \quad (3)$$

$\varepsilon_r'$  est la partie réelle de la permittivité relative (obéissant à l'équation (1)) et  $\varepsilon_r''$  la partie imaginaire. Contrairement aux diélectriques classiques, les permittivités relatives des matériaux ferroélectriques sont des fonctions de  $E_{exc}$  mais aussi de l'état de polarisation du matériau. En appliquant un champ électrique continu, il est ainsi possible de décrire la variation des paramètres de Rayleigh ( $\varepsilon_r(0)$  et  $\alpha$ ) pour la partie réelle et la partie imaginaire de la permittivité et de déduire la contribution de chacun de ses paramètres dans la valeur de permittivité et des pertes mesurées à partir du cycle  $\varepsilon_r' - E_{cont}$ . Contrairement au modèle de Rayleigh, qui ne prend en compte que les pertes associées aux mouvements des parois de domaine (terme  $\alpha/2$ ), le modèle proposé permet de considérer l'ensemble des pertes associées à l'échantillon (pertes liées à l'interface électrode/matériau, mouvements des parois de domaines...).

## Conclusion

Pour un diélectrique classique, la mesure de permittivité et des pertes n'est pas influencée par l'amplitude du champ électrique appliqué. Pour un matériau ferroélectrique, ces deux grandeurs suivent une évolution linéaire décrite par la loi de Rayleigh (1). La variation de polarisation associée à cette évolution est aussi donnée par une loi semi empirique de Rayleigh (2) qui ne prend en compte que les pertes associées aux mouvements des parois de domaine. La nouvelle approche proposée ici (3) permet également de considérer le comportement diélectrique du matériau ferroélectrique. Ce modèle prend en compte toutes les pertes de l'échantillon, permet d'en dissocier chaque contribution et possède l'avantage d'être défini en tout point du cycle.

## Références

- [1] A. Outzourhit, J. U. Trefny, T. Kito, B. Yarar, A. Naziripour and A. M. Hermann, Fabrication and characterization of  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  tunable thin film capacitors, *Thin Solid Films*, **259**, 218-224 (1995)
- [2] Z. G. Zhang, D. P. Chu, B. M. McGregor, P. Migliorato, K. Ohashi, K. Hasegawa and T. Shimoda, Frequency dependence of the dielectric properties of La-doped  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0,35}\text{Ti}_{0,65})\text{O}_3$  thin films, *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 2892-4 (2003)
- [3] M. Iwabuchi and T. Kobayashi, Growth and characterization of epitaxial  $\text{SrTiO}_3$  thin films with prominent polarizability, *J. Appl. Phys.*, **75**, 5295-5301 (1994)
- [4] M. Guilloux-Viry, J. R. Duclere, A. Rousseau, A. Perrin, D. Fasquelle, J. C. Carru, E. Cattin, C. Soyer and D. Remiens, Dielectric characterization in a broad frequency and temperature range of  $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$  thin films grown on Pt electrodes, *J. Appl. Phys.*, **97**, 114102-1-7 (2005)
- [5] S. Bhattacharyya, S. Saha and S. B. Krupanidhi, Investigation of reversible and irreversible polarizations in thin films of  $\text{SrBi}_2(\text{Ta}_{0,5}\text{Nb}_{0,5})_2\text{O}_9$ , *Thin Solid Films*, **422**, 155-60 (2002)
- [6] J. H. Ma, X. J. Meng, J. L. Sun, T. Lin, F. W. Shi, G. S. Wang and J. H. Chu, Effect of excess Pb on crystallinity and ferroelectric properties of PZT(40/60) films on  $\text{LaNiO}_3$  coated Si substrates by MOD technique, *Appl. Surf. Sci.*, **240**, 275-9 (2005)
- [7] O. Boser, Statistical theory of hysteresis in ferroelectric materials, *J. Appl. Phys.*, **62**, 1344-8 (1987)
- [8] S. Bhaskar, S. B. Majumder, P. S. Dobal, R. S. Katiyar and S. B. Krupanidhi, Structural and electrical characteristics of  $\text{Pb}_{0,90}\text{La}_{0,10}\text{TiO}_3$  thin films on different bottom electrodes, *J. Appl. Phys.*, **89**, 5637-43 (2001)
- [9] L. Neel, Théorie des lois d'aimantation de Lord Rayleigh, *Cahier Phys.*, **12**, 1-12 (1942)