

Interactions d'interface dans des superréseaux ferroélectriques révélées par leurs transitions de phase

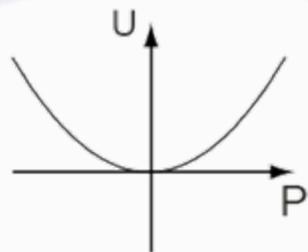
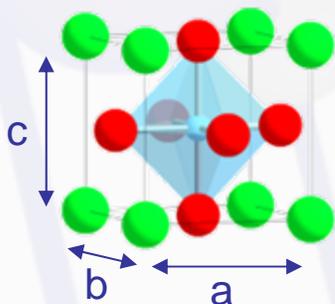
*M. Dawber^{*1}, N. Stucki¹, C. Lichtensteiger¹, S. Gariglio¹, E. Bousquet², P. Hermet², P. Ghosez², and J.-M. Triscone¹*

¹ DPMC, Université de Genève, Suisse, ² Physique Théorique des Matériaux, Université de Liège, Belgium

^{*} Maintenant à Dept. of Physics and Astronomy, Stony Brook University, NY, USA

Superréseaux de $\text{PbTiO}_3 / \text{SrTiO}_3$

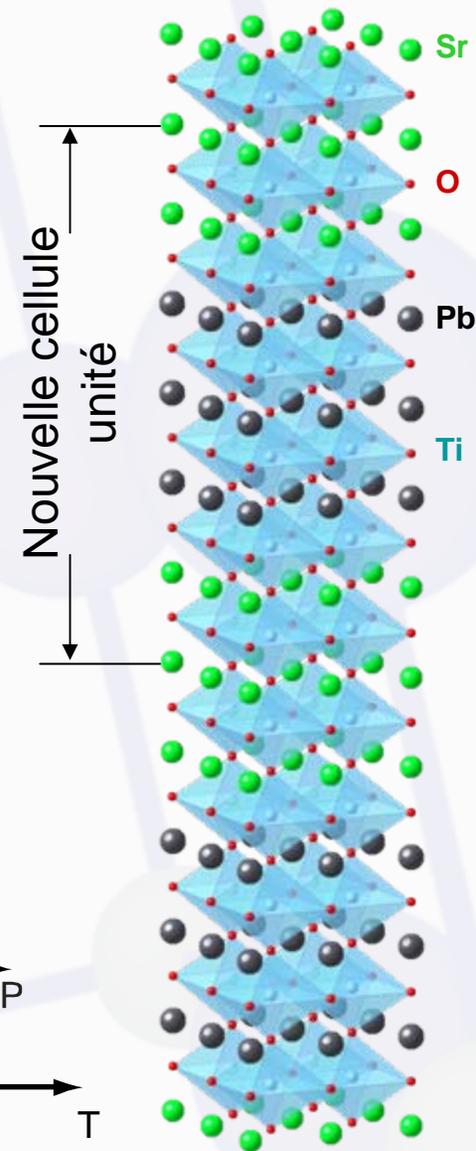
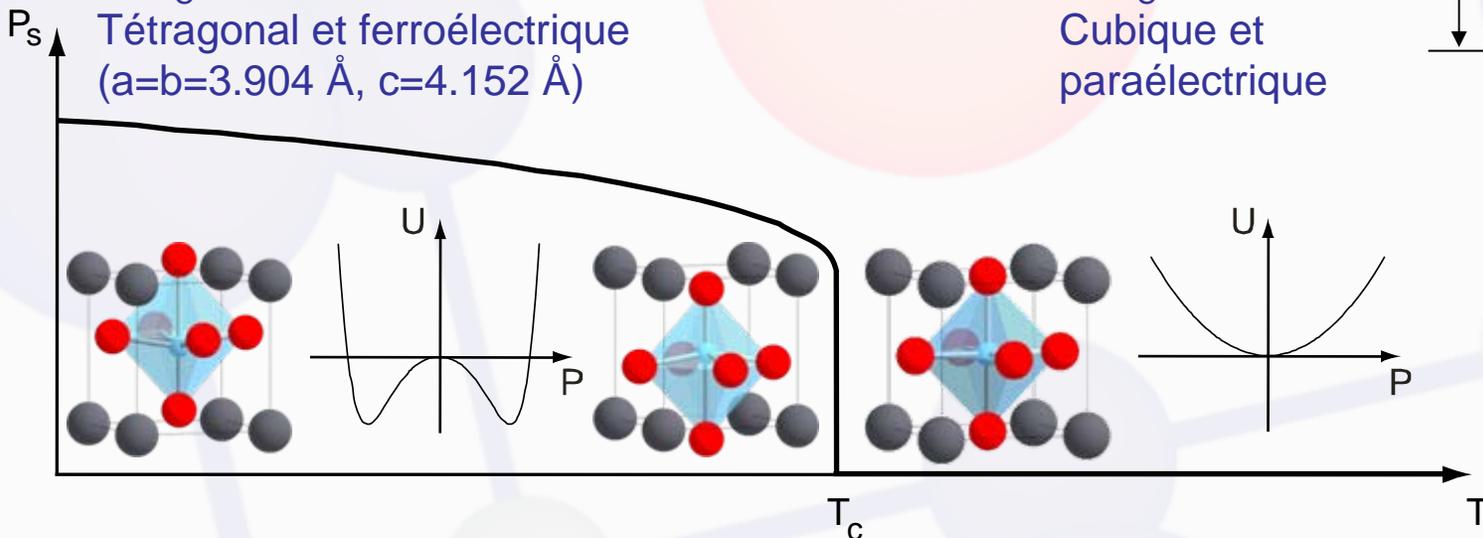
SrTiO_3 (STO) paraélectrique à température ambiante, $a=b=c=3.905 \text{ \AA}$



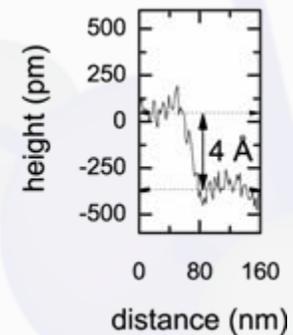
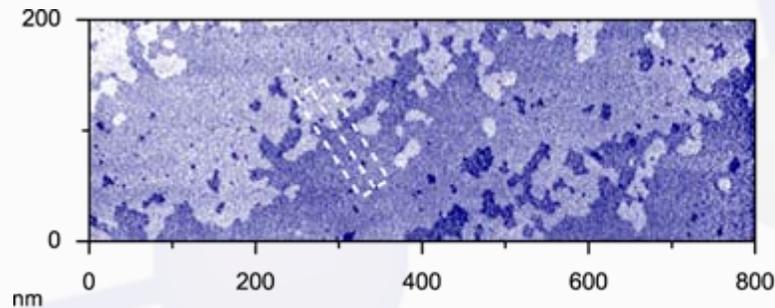
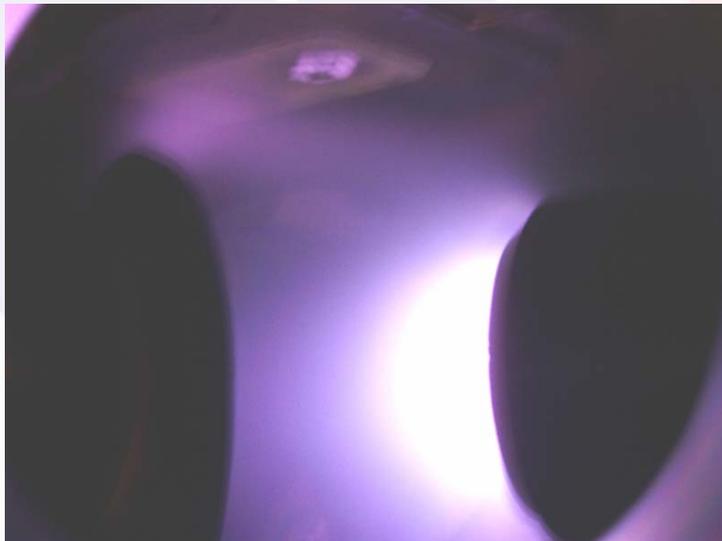
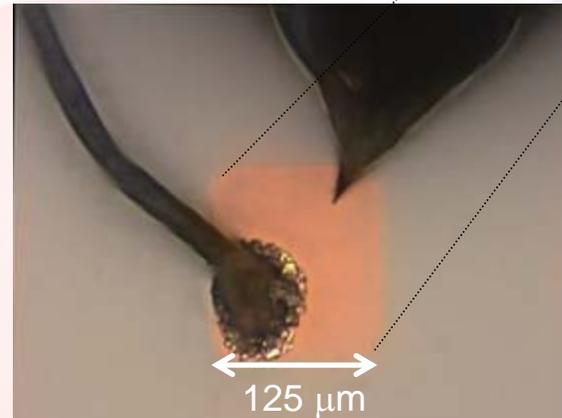
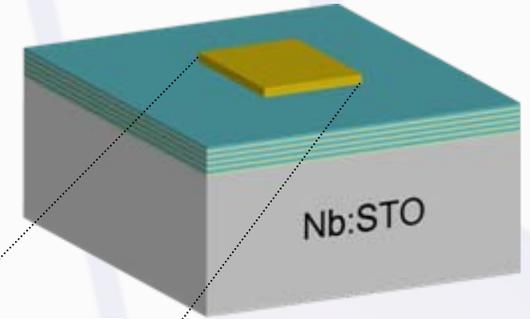
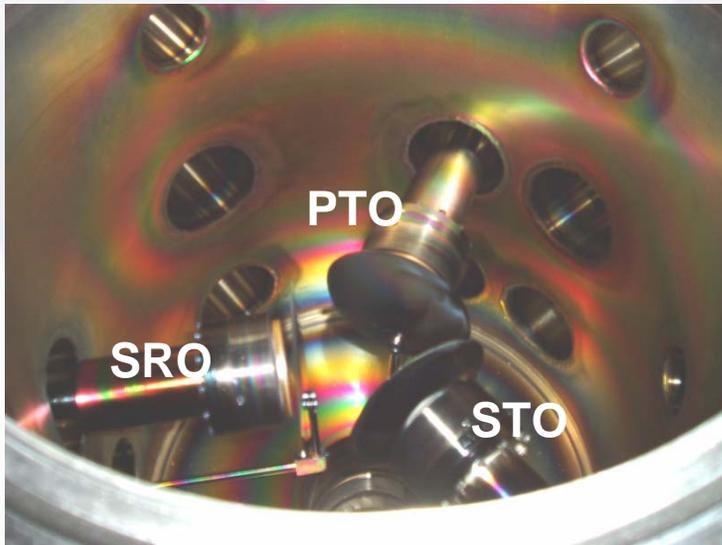
PbTiO_3 (PTO)

$T < T_C$
Tétragonal et ferroélectrique
($a=b=3.904 \text{ \AA}$, $c=4.152 \text{ \AA}$)

$T > T_C$
Cubique et paraélectrique



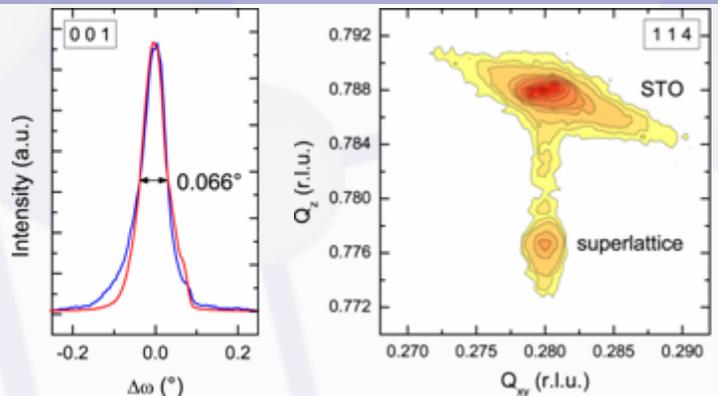
Echantillons – Croissance



Sommaire

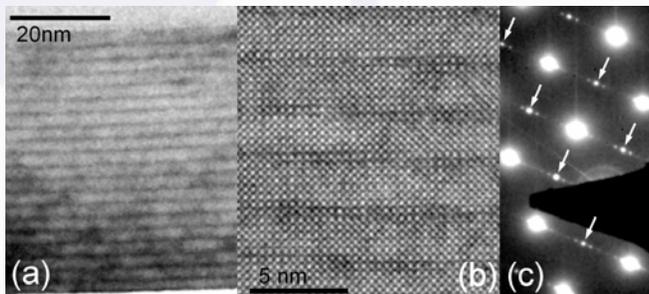
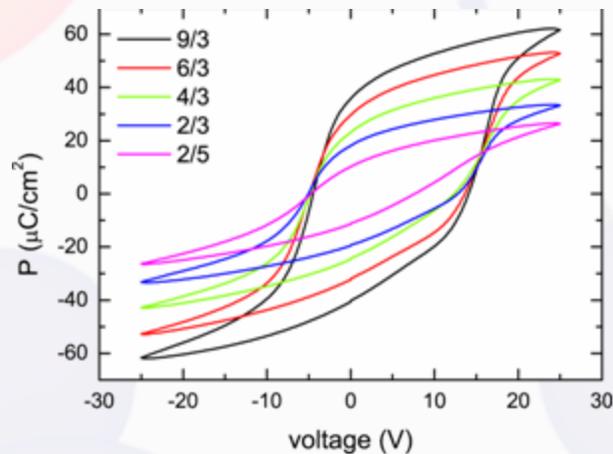
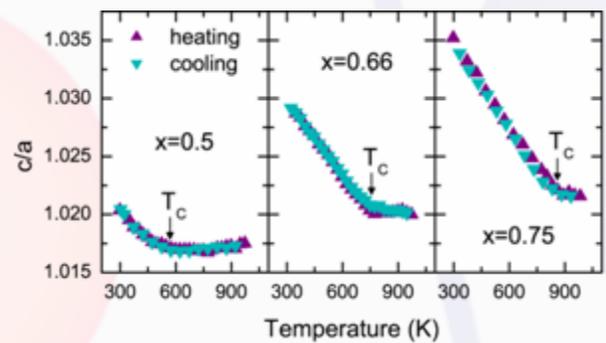
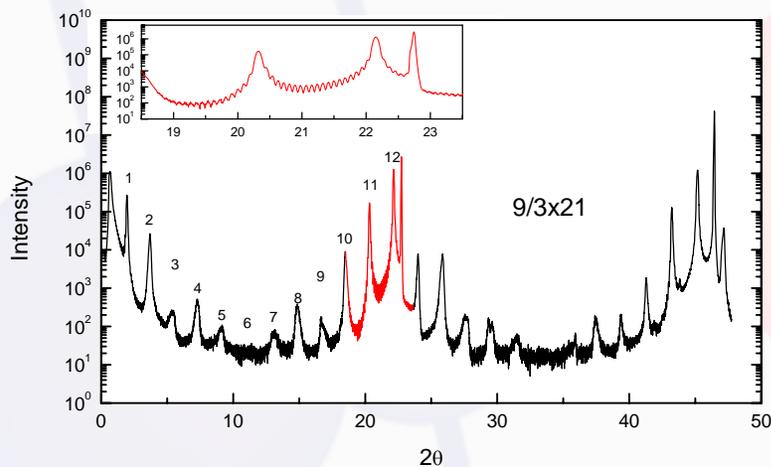
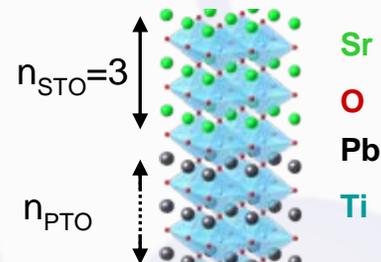
- Caractérisation
- Modèle électrostatique
- Ferroélectricité impropre
- Propriétés piézoélectriques des superréseaux
- Conclusions

Superréseaux – Caractérisation

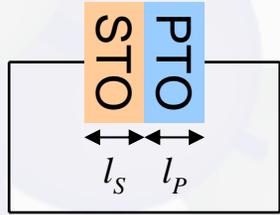


Fraction de PTO x

$$\frac{n_{\text{PTO}}}{n_{\text{PTO}} + n_{\text{STO}}}$$



Modèle électrostatique



$$U_{SL}(P_P, P_S) = xU_P(P_P) + (1 - x)U_S(P_S) + U_{elec}(P_P, P_S)$$

$$U_{elec}(P_P, P_S) = \frac{-l_P E_P \cdot P_P - l_S E_S \cdot P_S}{l_P + l_S}$$

$$U_{elec}(P_P, P_S) = \frac{x(1 - x)}{\epsilon_0} (P_S - P_P)^2 > 0$$

- Polarisation uniforme dans la structure :

$$U_{SL}(P) = xU_P(P) + (1 - x)U_S(P)$$

- En utilisant les énergies libres de PTO et STO et en suivant la procédure de Pertsev pour les couches minces :

$$U(P) = a_3^* P^2 + a_{33}^* P^4 + a_{111} P^6 + \frac{c_{11}^2 + c_{11}c_{12} - 2c_{12}^2}{c_{11}} u_m^2$$

$$a_3^* = a_1 + 2\left(\frac{c_{12}}{c_{11}} g_{11} - g_{12}\right) u_m,$$

$$a_{33}^* = a_{11} - \frac{g_{11}^2}{2c_{11}}.$$

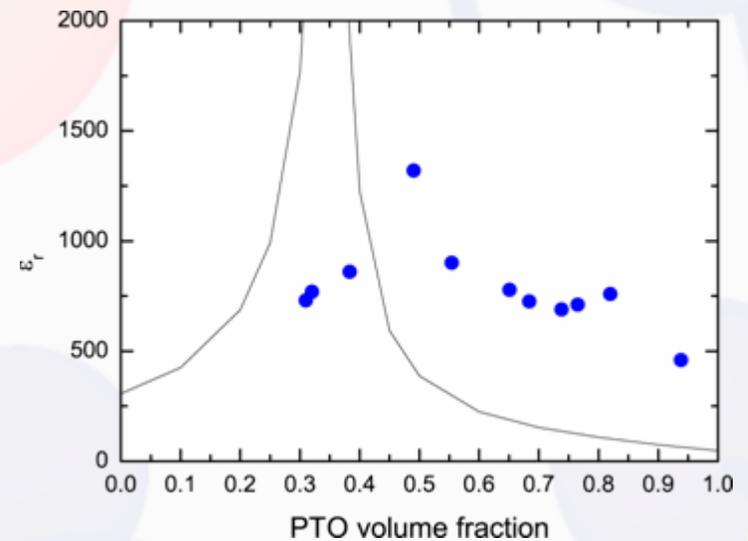
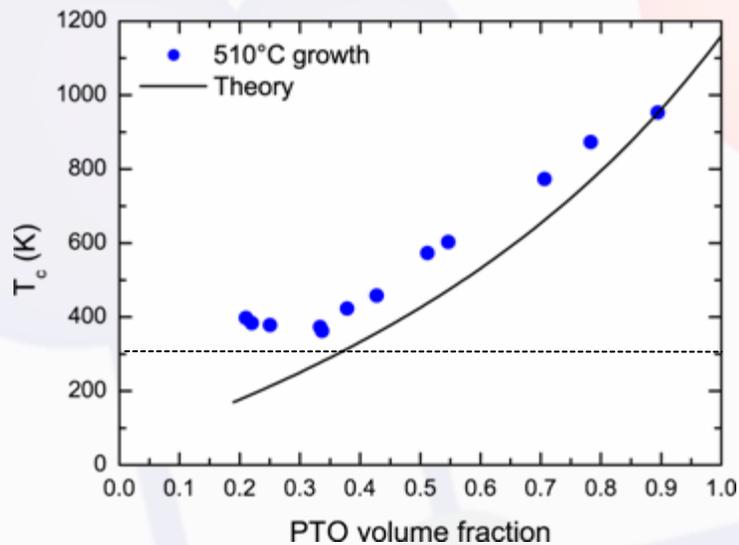
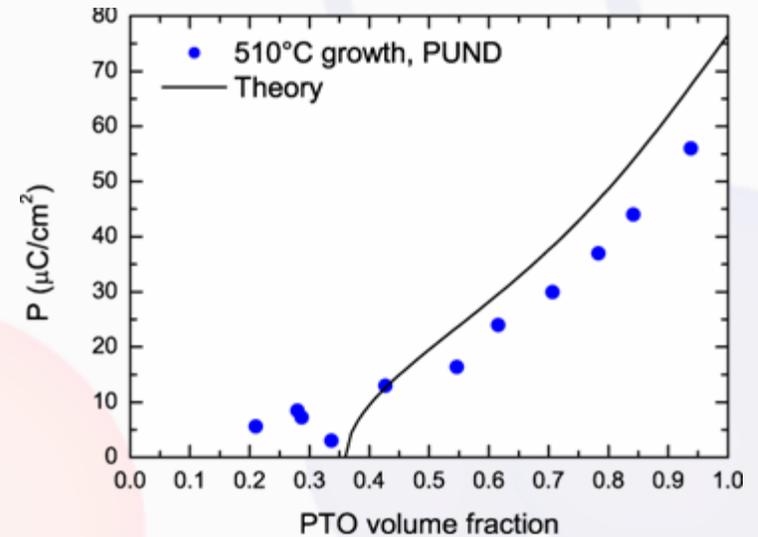
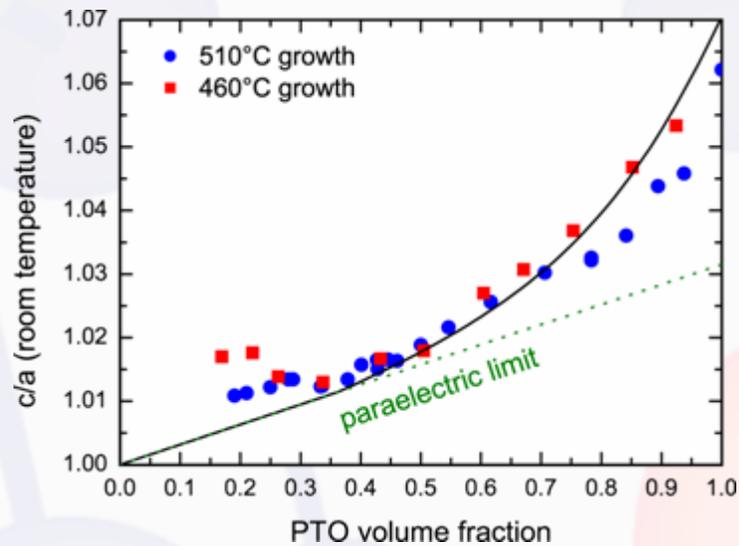
N.A. Pertsev et al., Phys. Rev. Lett., 80 1980 (1998)

N.A. Pertsev et al., Phys. Rev. B, 61 R825 (2000)

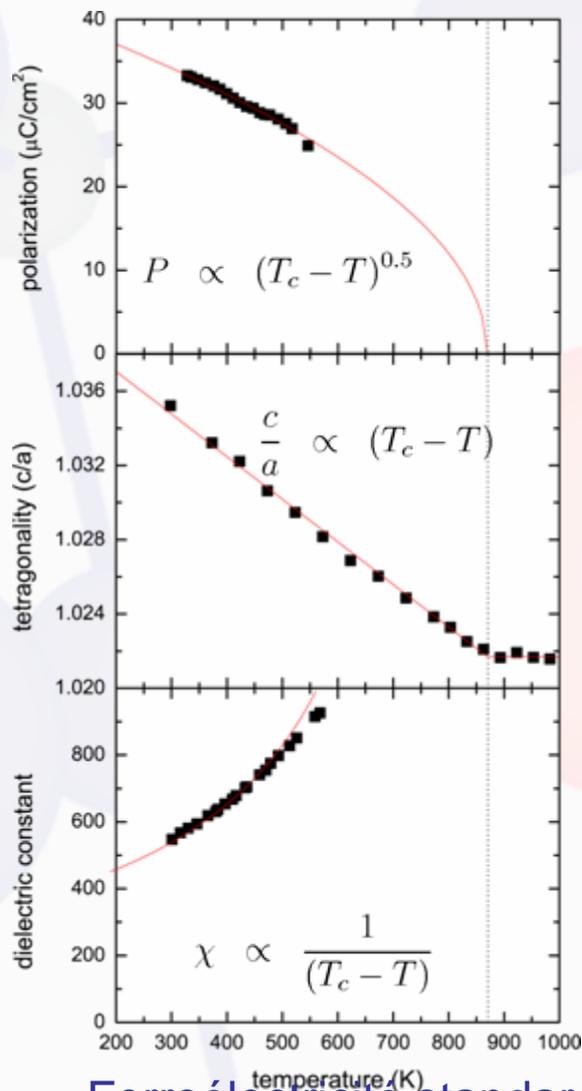
M. Dawber et al., Adv. Mat., 19 4153 (2007)

- Finalement, on utilise les coefficients connus pour PTO et STO.

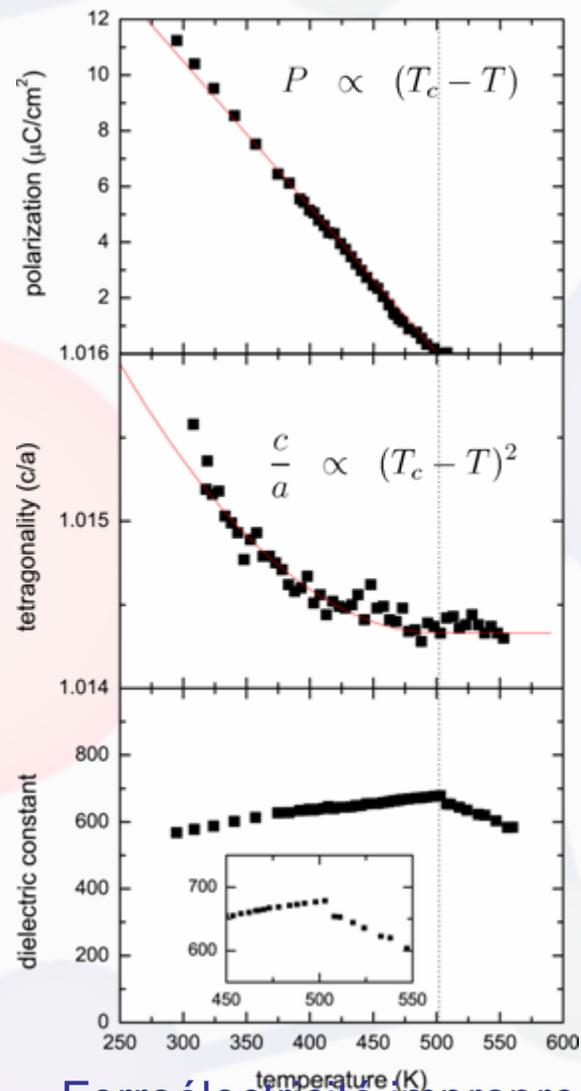
c/a , P , T_c , ϵ_r en fonction de la PTO volume fraction



Comparaison d'un 9/3 et d'un 2/3



Ferroélectricité standard



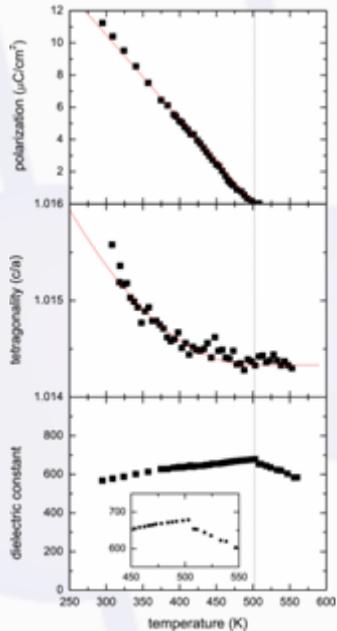
Ferroélectricité impropre

Ferroélectricité impropre

En utilisant un paramètre d'ordre principal à deux composantes (ϕ_{zi}, ϕ_{zo}) et la polarisation comme paramètre secondaire :

$$U = (T - T_c) \left(\frac{a_{zi}}{2} \phi_{zi}^2 + \frac{a_{zo}}{2} \phi_{zo}^2 \right) - \frac{\beta}{2} P_z^2 - g \phi_{zi} \phi_{zo} P_z + \frac{1}{4} (b_{zi} \phi_{zi}^4 + b_{zo} \phi_{zo}^4) - E_z P_z$$

Un terme croisé linéaire couplant (ϕ_{zi}, ϕ_{zo}) et P apparaît.



$$P_z \propto (T_c - T)$$

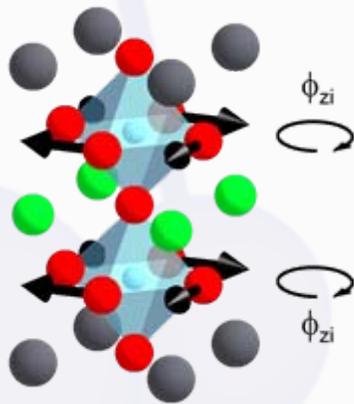
$$(c/a)_{improper} \propto (T_c - T)^2$$

χ est indépendant de T avec une valeur plus grande pour $T < T_c$ que pour $T > T_c$.

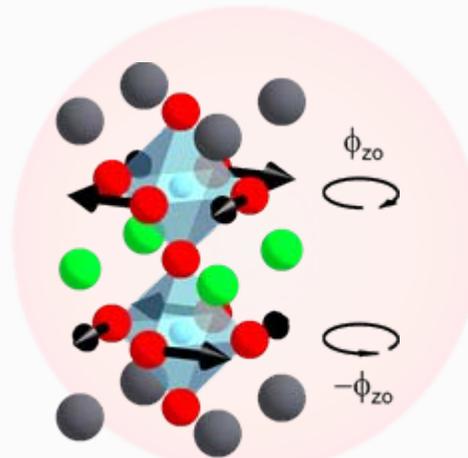
Quels pourraient être ce paramètre d'ordre principal et l'origine de ce comportement impropre de la ferroélectricité pour des x faibles dans nos structures ?

Paramètres d'ordre possibles

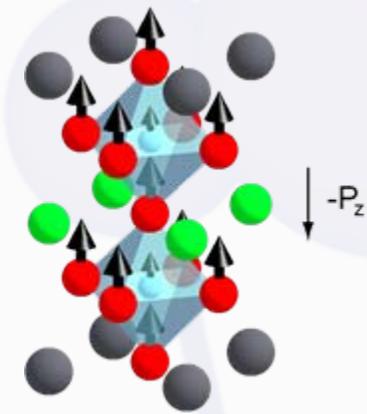
$$U = (T - T_c) \left(\frac{a_{zi}}{2} \phi_{zi}^2 + \frac{a_{zo}}{2} \phi_{zo}^2 \right) - \frac{\beta}{2} P_z^2 - g \phi_{zi} \phi_{zo} P_z + \frac{1}{4} (b_{zi} \phi_{zi}^4 + b_{zo} \phi_{zo}^4) - E_z P_z$$



Antiferrodistortif $AFD_{zi}(\phi_{zi})$

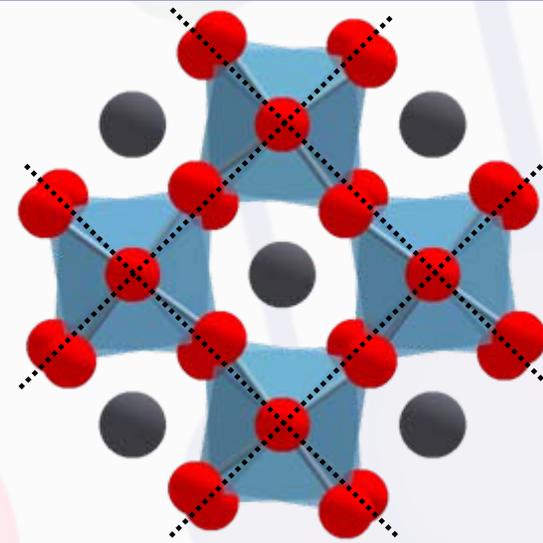
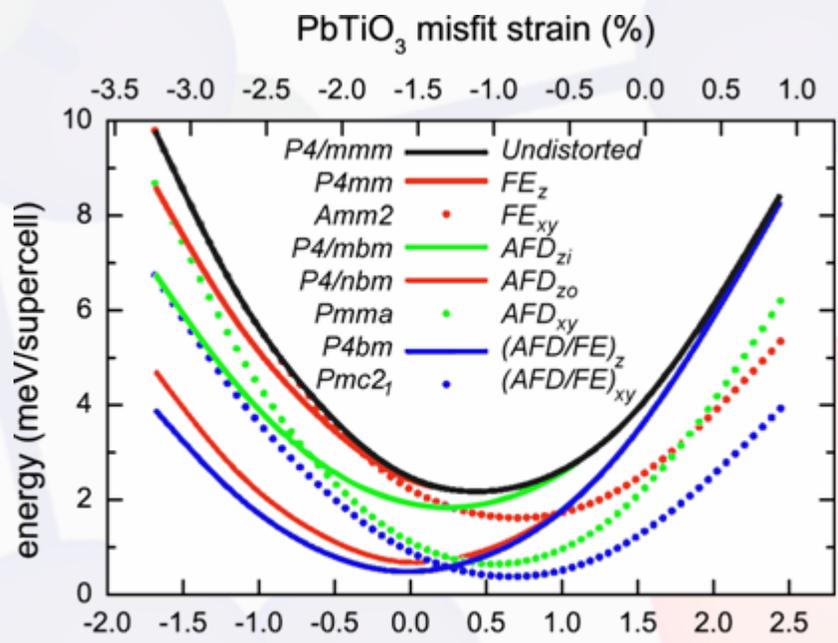


Antiferrodistortif $AFD_{zo}(\phi_{zo})$

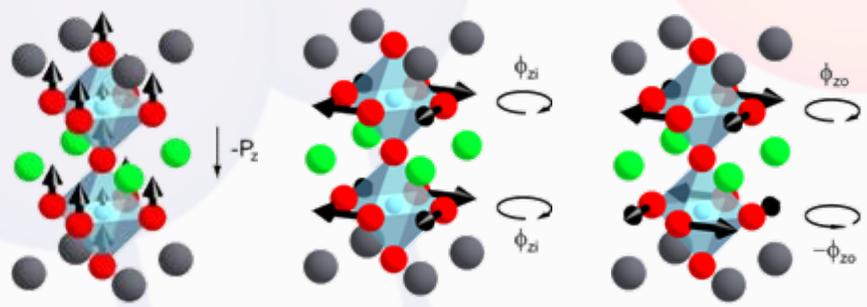


Ferroélectrique $FE_z(P_z)$

Etat fondamental et distortions



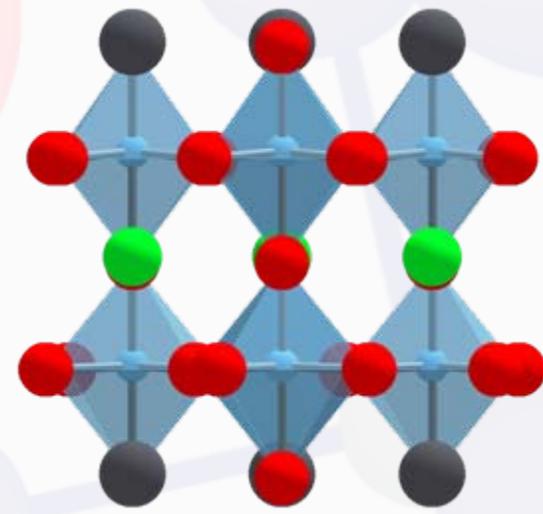
SrTiO₃ misfit strain (%)



$FE_z (P_z)$

$AFD_{zi} (\phi_{zi})$

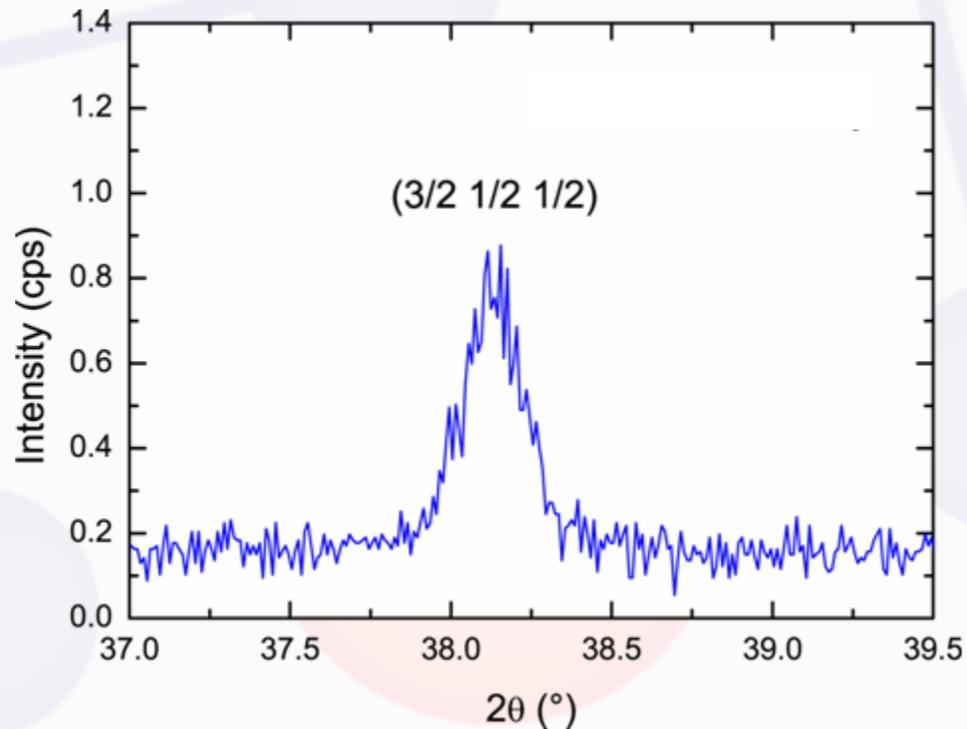
$AFD_{zo} (\phi_{zo})$



Distorsion calculée

E. Bousquet et al., Nature, vol. 452, 732 (2008)

Evidence expérimentale – Rayons-x (1.5 0.5 0.5)



Scan θ – 2θ autour de la réflexion (1.5 0.5 0.5) dans un superréseau avec une cellule unité de 14.9 Å (2/2) crûe sur un substrat de STO non dopé. Le pic indique un doublement de la cellule unité dans le plan et suggère la présence d'une rotation antiferrodistortive des octaèdres d'oxygène.

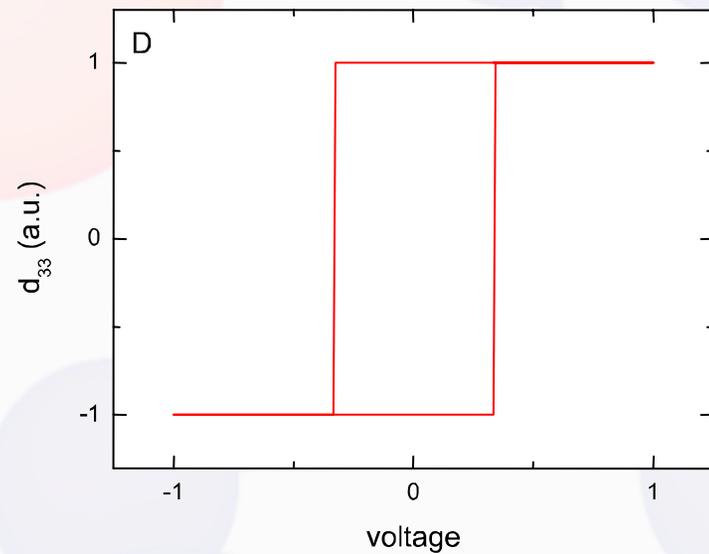
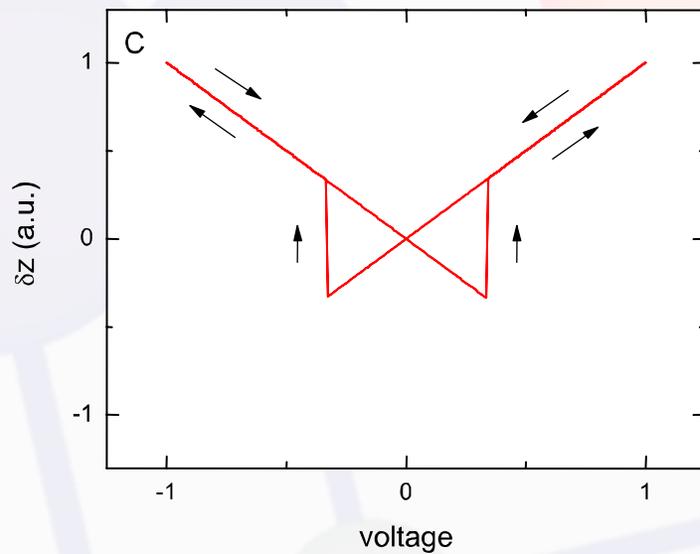
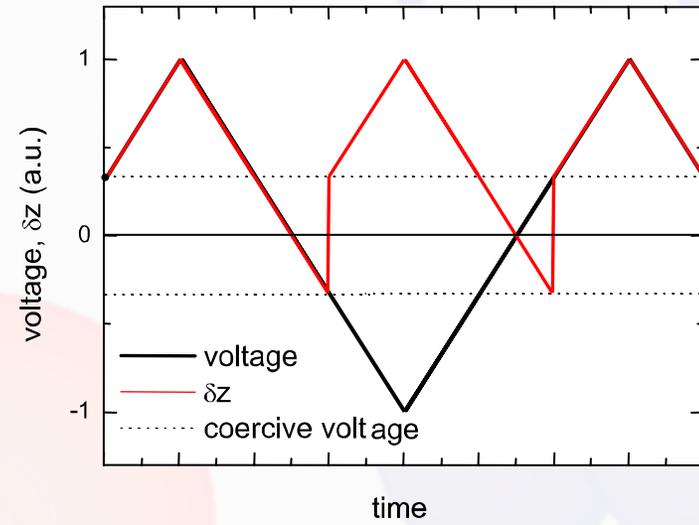
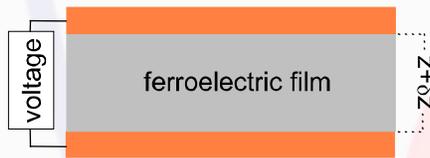
Sommaire

- Caractérisation
- Modèle électrostatique
- Ferroélectricité impropre
- Propriétés piézoélectriques des superréseaux
- Conclusions

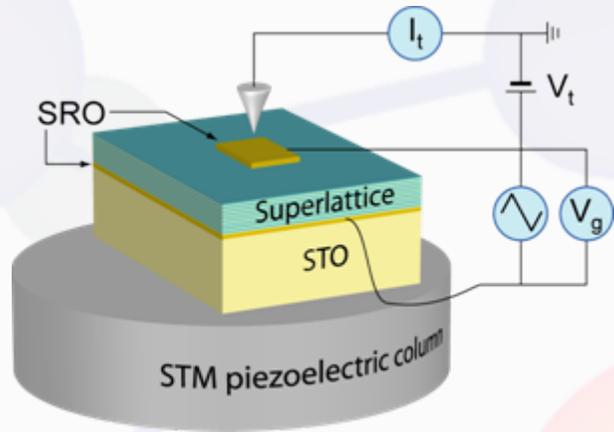
Effet piézoélectrique

$$e_{33} \sim d_{33} E_3$$

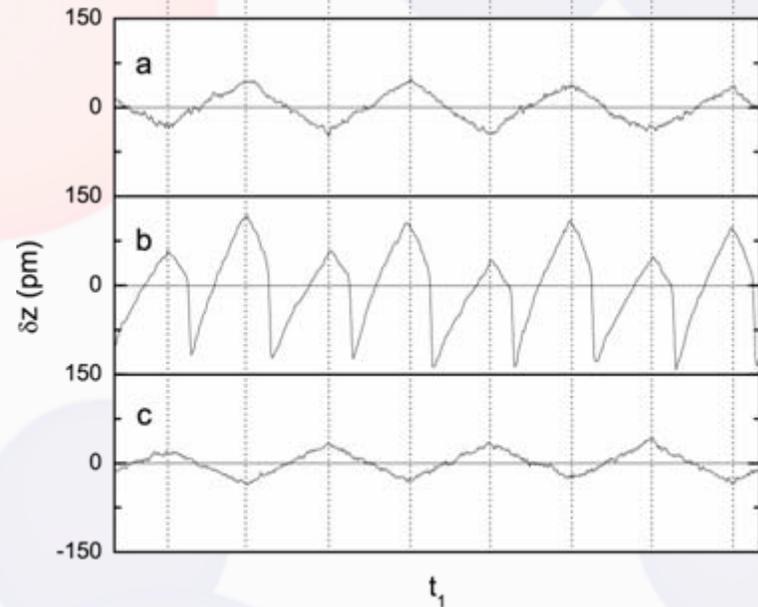
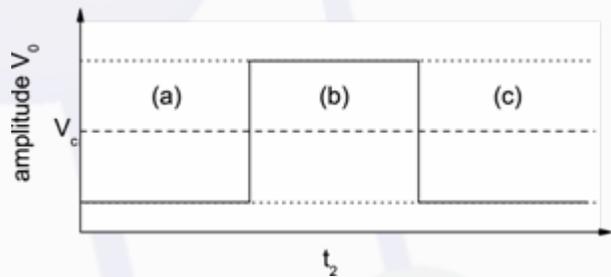
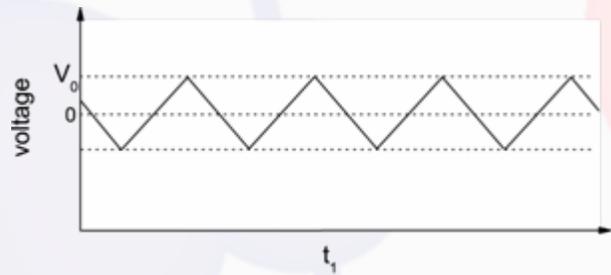
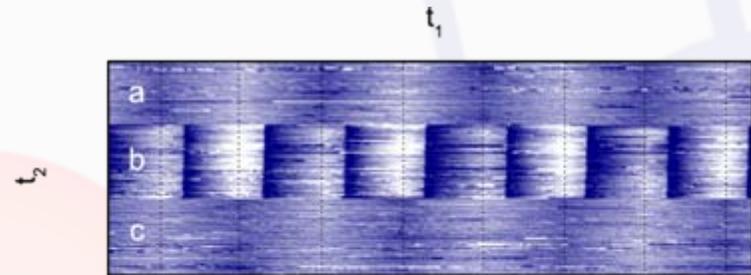
$$d_{33} \sim P\chi$$



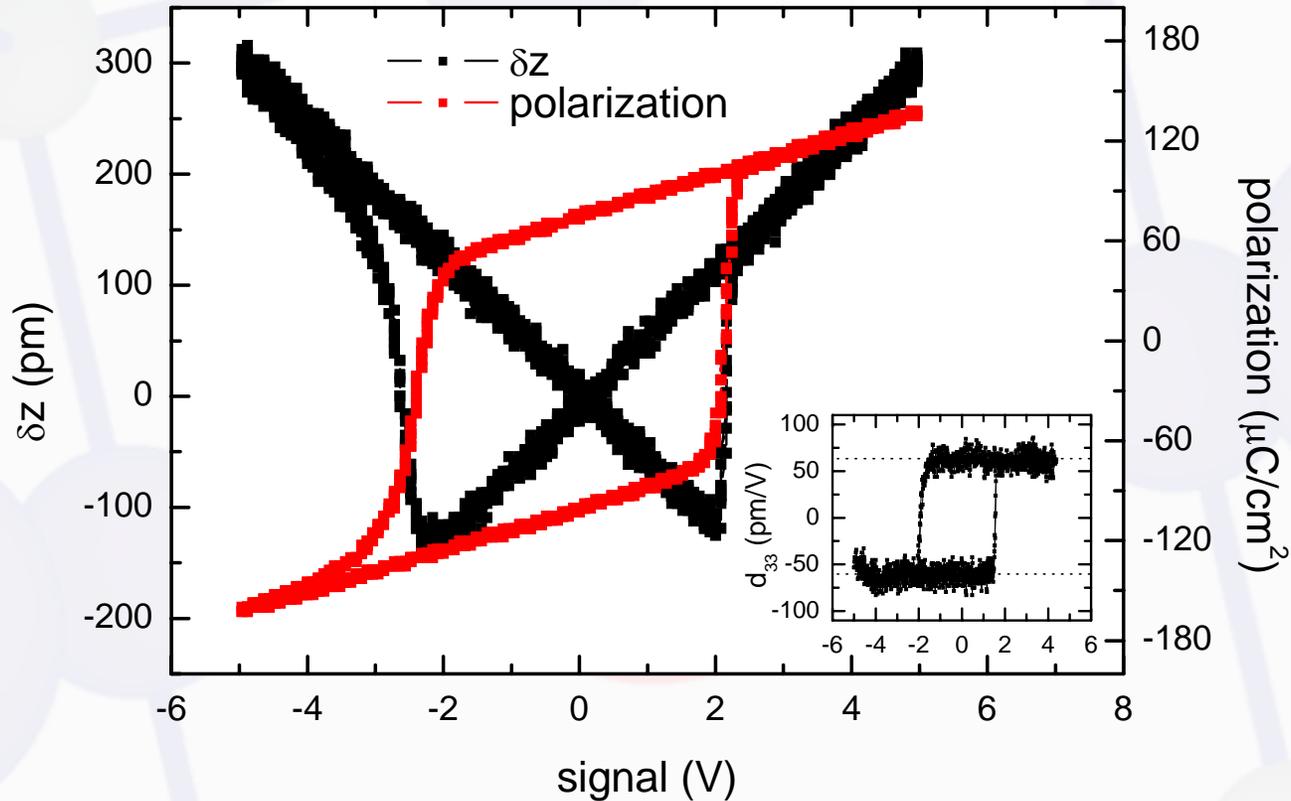
Effet piézoélectrique (STM) - Test sur PZT



Kuffer et al., Appl. Phys. Lett. 77, 1701 (2000)

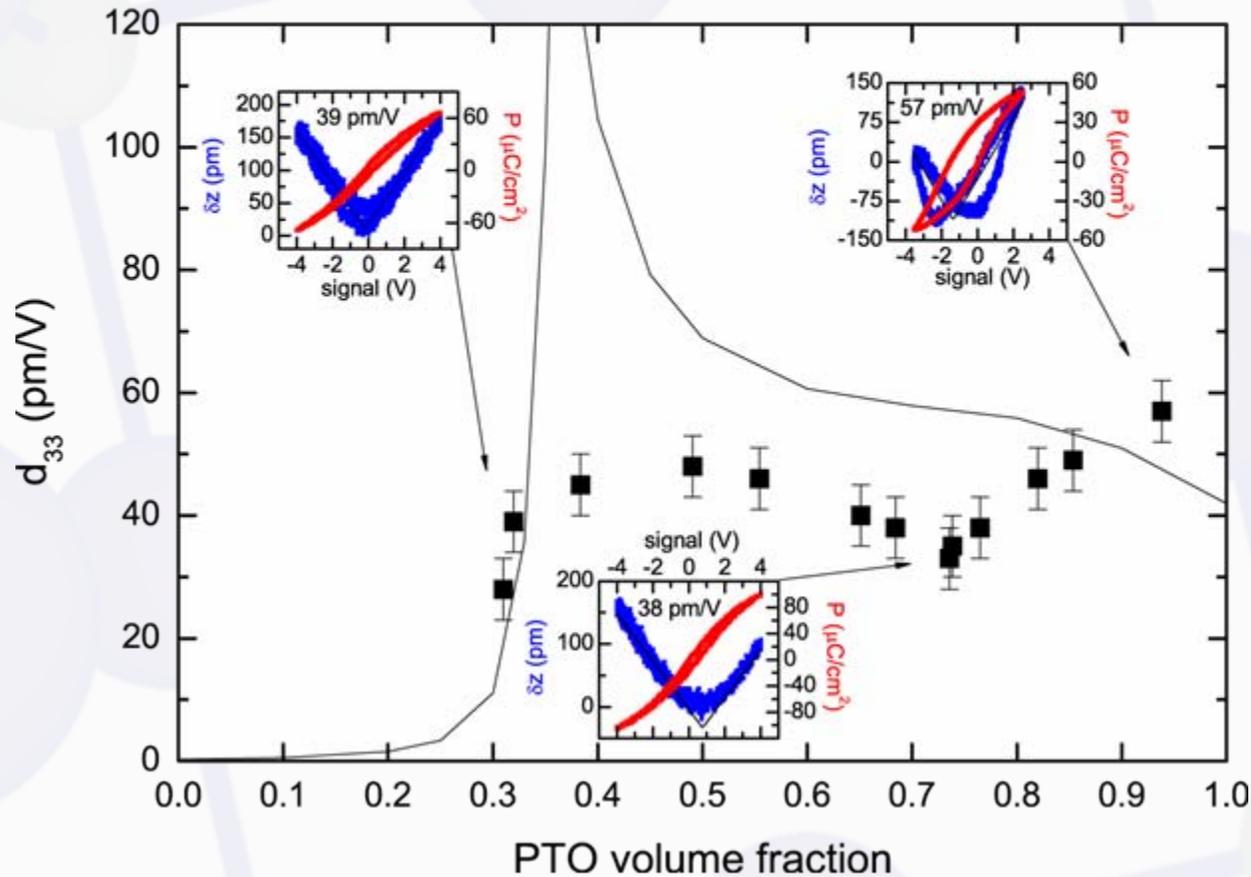


STM avec Sawyer-Tower - Test sur PZT 20/80



Le STM couplé à un circuit Sawyer-Tower permet de mesurer simultanément la réponse piézoélectrique et la polarisation dans l'échantillon.

Superréseaux sur SRO – d_{33} versus PTO volume fraction



Conclusions et perspectives

- Haute qualité cristalline et croissance cohérente de superréseaux PTO/STO.
- Développement d'un modèle électrostatique et prédiction des propriétés.
- Comportement ferroélectrique impropre :
 - Nouvel effet aux interfaces ;
 - Subtil état fondamental de la structure ;
 - Evidence expérimentale de ce nouvel état fondamental.
- Approche expérimentale avec support théorique :
 - Nouvelles routes pour la création d'oxydes sur mesure ;
 - Ingénierie d'interfaces : création, par exemple, de nouveaux matériaux avec couplage à d'autres instabilités.