

Frekventno ovisan dielektrični odziv spoja feroelektrik-dielektrik s negativnim električnim kapacitetom

Piskač, Matija

Master's thesis / Diplomski rad

2020

Degree Grantor / Ustanova koja je dodijelila akademski / stručni stupanj: **University of Zagreb, Faculty of Science / Sveučilište u Zagrebu, Prirodoslovno-matematički fakultet**

Permanent link / Trajna poveznica: <https://um.nsk.hr/um:nbn:hr:217:663047>

Rights / Prava: [In copyright](#)/[Zaštićeno autorskim pravom.](#)

Download date / Datum preuzimanja: **2024-11-18**



Repository / Repozitorij:

[Repository of the Faculty of Science - University of Zagreb](#)



SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET
FIZIČKI ODSJEK

Matija Piskač

Frekventno ovisan dielektrični odziv spoja
feroelektrik-dielektrik s negativnim električnim
kapacitetom

Diplomski rad

Zagreb, 2020.

SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET
FIZIČKI ODSJEK

INTEGRIRANI PREDDIPLOMSKI I DIPLOMSKI SVEUČILIŠNI STUDIJ
FIZIKA I INFORMATIKA; SMJER NASTAVNIČKI

Matija Piskač

Diplomski rad

**Frekventno ovisan dielektrični odziv
spoja feroelektrik-dielektrik s
negativnim električnim kapacitetom**

Voditelj diplomskog rada: izv. prof. dr. sc. Danko Radić

Ocjena diplomskog rada: _____

Povjerenstvo: 1. _____

2. _____

3. _____

Datum polaganja: _____

Zagreb, 2020.

Želim zahvaliti djevojci Nataliji na neiscrpnj ljubavi i podršci koju mi je pružala za vrijeme studija i pomoći pri lektoriranju. Želim zahvaliti mentoru Danku Radiću na pruženoj prilici, nevjerojatnom strpljenju i pomoći koju mi je dao kako bi završio ovaj rad te zahvaljujem svojoj obitelji radi koje sam mogao polaziti svoj studij.

Sažetak

Svijet postaje sve više digitaliziran te se javlja sve veća potreba za pohranom podataka, čime raste i potrošnja električne energije. Povećana potrošnja očituje se u problemu generiranja topline u integriranim krugovima. Navedeni problem ima pozadinu u fizici tranzistora, gdje se zbog Boltzmanove raspodjele napajanje tranzistora ne može spustiti ispod 1 V. Jedno moguće rješenje je negativni električni kapacitet koji pokazuju feroelektrični materijali. Pojava se može opisati u okviru Landauove teorije faznih prijelaza koja pokazuje da je uobičajeno rješenje s negativnim diferencijalnim kapacitetom nestabilno. Stavljanje sloja feroelektričnog materijala na dielektrik ispod vrata tranzistora, zbog rubnih uvjeta, stabilizira rješenje s negativnim kapacitetom te daje kumulativni efekt smanjenja recipročne strmine ispod napona praga, koja iznosi oko 60 mV po dekadi u konvencionalnom tranzistoru. U ovom radu, proučit ćemo fiziku feroelektrika te opisati feroelektričnost u okviru Landauove teorije faznih prijelaza na primjeru klasičnog feroelektrika BaTiO₃. Potom ćemo na temelju Tsividisovog modela tranzistora i Maxwellovih jednadžbi odrediti uvjet stabilizacije te uz pomoć Landau-Khalatnikove jednadžbe riješiti dobiven sustav. Odredit ćemo dielektrični odziv spoja feroelektrik-dielektrik u ovisnosti o frekvenciji u linearnom režimu analitički, odnosno u nelinearnom režimu numerički uz pomoć programskog jezika *Mathematica*.

Ključne riječi: feroelektrici, dielektrični odziv, negativni električni kapacitet, MOSFET, Tsividis, Landauova teorija, Landau-Khalatnikov

FREQUENCY DEPENDENT DIELECTRIC RESPONSE OF FERROELECTRIC-DIELECTRIC JUNCTION WITH NEGATIVE ELECTRIC CAPACITANCE

Abstract

The world is becoming increasingly digitalized and there is a growing need for data storage, thus increasing electricity consumption. Increased consumption is reflected in the problem of heat generation in integrated circuits. This problem has a background in transistor physics where, due to the Boltzmann distribution, transistor voltage cannot be reduced below 1 V. One possible solution to this is negative electrical capacitance exhibited by ferroelectric materials. The phenomenon can be described in the framework of Landau's theory of phase transitions, which shows that the usual solution with negative differential capacitance is unstable. Placing a layer of ferroelectric material on the dielectric below the transistor's gate, due to boundary conditions, stabilizes the solution with negative capacitance. This gives the cumulative effect of reducing the reciprocal slope below the threshold voltage, which is about 60 mV per decade in a conventional transistor. In this diploma paper, we will study the physics of ferroelectrics and describe ferroelectricity within Landau's theory of phase transitions using the classical ferroelectric BaTiO₃ as an example. Then, based on the Tsividis transistor model and the Maxwell equations, we will determine the stabilization condition and solve the obtained system using the Landau-Khalatnikov equation. We will determine the frequency-dependent dielectric response of a ferroelectric-dielectric junction in the linear regime analytically and in the non-linear regime numerically, using the programming language *Mathematica*.

Keywords: ferroelectrics, dielectric response, negative electric capacitance, MOSFET, Tsividis, Landau theory, Landau-Khalatnikov

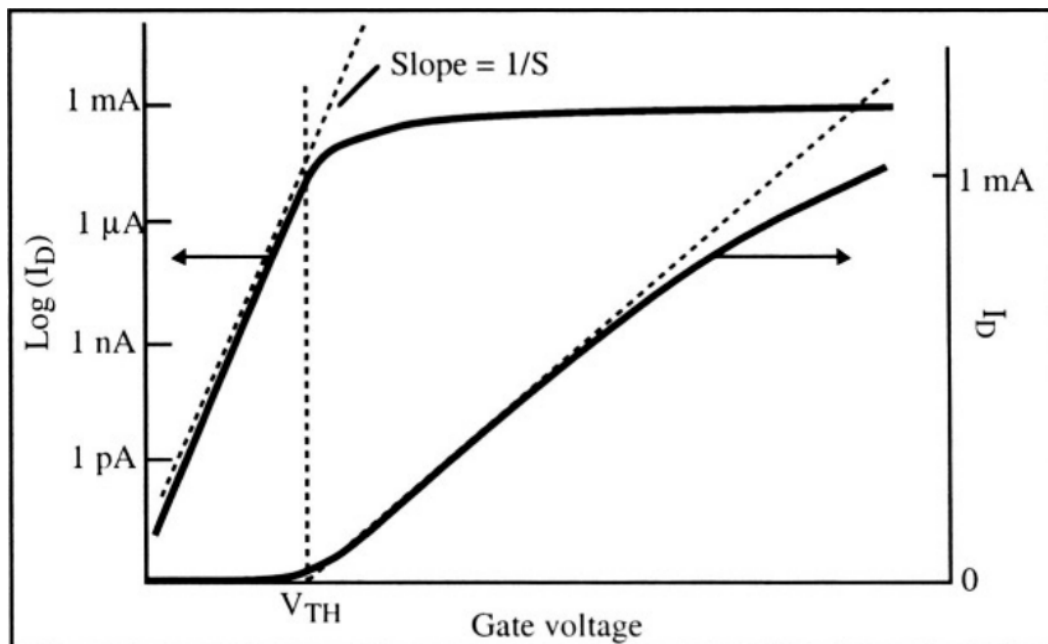
Sadržaj

1	Uvod	1
2	Dielektrici, polarizacija i dielektrični odziv	3
2.1	Frekventna ovisnost električne susceptibilnosti	8
3	Fizika feroelektrika	10
3.1	Piezoelektričnost	10
3.2	Feroelektričnost	11
4	Landauova teorija i fazni prijelazi	15
4.1	Fazni prijelazi u feroelektricima	16
5	Dielektrični odziv spoja FE-DE	21
5.1	Model stabilnog rješenja s negativnim kapacitetom	22
5.2	Analitičko linearno rješenje	25
5.3	Numeričko nelinearno rješenje	31
6	Zaključak	41
7	Metodička priprema	42
	Literatura	52

1 Uvod

Kako svijet postaje sve više digitaliziran, podatkovni centri i podatkovne mreže postaju sve važniji i veći potrošači električne energije. Globalni internetski promet se utrostručio od 2015. i očekuje se da će se do 2020. dodatno udvostručiti na 4.2 zetabajta godišnje. Očekuje se rast broja korisnika mobilnog interneta na 5 milijardi u 2025. godini, naspram 3.6 milijardi korisnika u 2018. godini. Broj IoT („Internet of Things”, hrv. internet stvari) veza će se utrostručiti na preko 25 milijardi veza do 2025., naspram 7.5 milijardi veza u 2018. godini. Ovi trendovi potiču eksponencijalni rast u potražnji za uslugama podatkovnih centara i mrežnim uslugama [1].

Većina svjetskog IP („internet protokol”) prometa prolazi upravo kroz podatkovne centre. Veća mrežna povezanost povećava potražnju za uslugama podatkovnih centara, što zahtijeva veću potrošnju električne energije. Globalno se procjenjuje da su podatkovni centri u 2018. godini imali potrošnju električne energije od 198 TW h, a podatkovne mreže 260 TW h, od čega čak dvije trećine potrošnje otpada na mobilne mreže [1]. Nastavi li se ovakav trend potražnje, potrošnja struje u skoroj budućnosti mogla bi postati neodrživa. Sama pozadina ove energetske krize krije se u osnovnom elektroničkom elementu potrebnom za pohranjivanje podataka, tranzistoru. Naime, fizika tranzistora nalaže da je potrebno povećati napon vrata V_G za $k_B T \ln 10 = 60 \text{ mV}$ da bi se, prema Boltzmannovoj raspodjeli, povećala struja odvoda I_D za red veličine na sobnoj temperaturi. Ovdje su $k_B = 8.617 \times 10^{-5} \text{ eV K}^{-1}$ Boltzmannova konstanta i T sobna temperatura. Slijedi da donja granica recipročne strmine ispod napona praga $S = \partial V_G / \partial \log_{10} I_D$ iznosi oko 60 mV po dekadi te je potrebno napajanje od 1 V da bi se održao optimalan rad tranzistora. Ovo ograničenje poznato je kao „Boltzmannova tiranija” i predstavlja fundamentalno fizičko usko grlo [2]. Postoje istraživanja koja žele riješiti ovaj problem tako da se promijeni transportni mehanizam kako bi se izbjegao minimum od 60 mV po dekadi. Tu spadaju tunelirajući tranzistori s efektom polja („band-to-band tunneling field effect transistor”, TFET), impaktno ionizacijski metal oksid poluvodički tranzistori („impact ionization metal oxide semiconductor transistors”, IMOS) i nano-elektro mehanički prekidači („nano-electro mechanical switches”, NEM). Alternativan pristup, pomoću kojeg bi se održao transportni mehanizam, mijenja napon vrata tako da se poveća površinski potencijal više nego je konvencionalno moguće [2], čime se smanjuje inverzna strmina ispod napona praga.



Slika 1.1: Struja odvoda u logaritamsko-linearnoj skali za male napone između odvoda i izvora V_{DS} . Slika preuzeta iz [3]

Kako je predstavljeno u radu [4], to se postiže tako da se oksidni sloj vrata zamijeni s materijalom koji ima negativni diferencijalni kapacitet $C = \partial^2 U / \partial Q^2 < 0$, odnosno čija slobodna energija ima parabolu okrenutu prema dolje. Takvo ponašanje zadovoljavaju feroelektrici, no rješenje u području gdje se javlja negativni kapacitet je nestabilno [4].

Rad [5] daje uvjete za stabilizaciju negativnog kapaciteta temeljene na Tsividi-sovom modelu MOS tranzistora i Maxwellovim jednadžbama. Sloj feroelektričnog materijala stavlja se na sloj metalnog oksida te se radi rubnih uvjeta polarizacija u feroelektričnom sloju fiksira na nestabilnom dijelu na kojem se javlja negativni kapacitet, efektivno stabilizirajući rješenje u tom režimu.

Cilj ovog rada je pomoću Landauove teorije faznih prijelaza pokazati energetske slike i osnovno ponašanje feroelektričnih materijala na primjeru barijeva titanata (BaTiO_3) te pomoću Landau-Khalatnikove jednadžbe i uvjeta iz [5] postaviti i riješiti sustav jednadžbi iz čijih će se rješenja, preko Fourierovih transformata, dobiti frekventno ovisan dielektrični odziv spoja feroelektrik-dielektrik, odnosno spoja barijeva titanata i aluminijskog oksida.

2 Dielektrici, polarizacija i dielektrični odziv

Većina materijala može se ugrubo svrstati u dvije skupine: vodiče i dielektrike (izolatore). Vodiči su tvari s velikom koncentracijom broja naboja koji se mogu kretati skoro slobodno kroz materijal. To obično znači da znatan broj elektrona (jedan ili dva po atomu) ne pripada nijednoj specifičnoj jezgri. Za razliku od toga, u dielektricima su svi elektroni vezani za pripadajući atom ili molekulu. Na mikroskopskoj razini, pomaci elektrona u dielektriku nemaju mnogo utjecaja na razmještaj naboja u materijalu, ali njihovi kumulativni efekti zaslužni su za karakteristično ponašanje dielektrika [6].

U tom vidu, uzmimo model kristala s jednostavnom kubičnom rešetkom sastavljenom od neutralnih čestica te promotrimo što će se dogoditi na razini jedne čestice, odnosno na razini kristala ako se materijal pronade u statičkom električnom polju. Uzmemo li za česticu atom te je stavimo u statično električno polje, polje će djelovati na pozitivnu jezgru atoma i negativni električni oblak koji je okružuje. Jezgra će biti gurnuta u smjeru polja, dok će elektronski oblak biti gurnut u suprotnom smjeru. Središta raspodjele naboja će se razdvojiti i više se neće poklapati. Zbog toga će se razapeti novo lokalno polje koje nastoji stisnuti središta zajedno. Ako je polje koje nastoji razdvojiti jezgru i elektron jako, atom će se ionizirati i izgubiti elektron. No, ako je polje slabije, privlačna sila između naboja atoma i sila koja nastoji ionizirati atom doći će u ravnotežno stanje i atom je tada polariziran. Naboji atoma ostaju razdvojeni, atom postaje dipol i dobiva dipolni moment \vec{p} koji u najjednostavnijem slučaju ima isti smjer kao i vanjsko električno polje \vec{E} . Dipolni moment možemo definirati na dva načina. S jedne strane, dva raznoimena naboja q , koja su razmaknuta za udaljenost \vec{d} , imat će dipolni moment:

$$\vec{p} = q\vec{d}. \quad (2.1)$$

S druge strane, možemo gledati na stvaranje dipolnog momenta kao odziv čestice na polarizirajuće električno polje \vec{E} :

$$\vec{p} = \alpha\vec{E}, \quad (2.2)$$

gdje je α općenito odzivna funkcija zvana atomska polarizibilnost. Njezina vrijed-

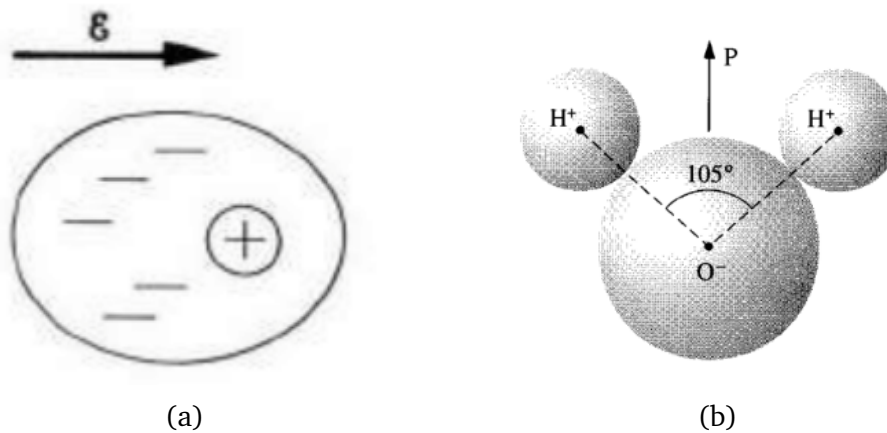
nost ovisi o detaljnoj strukturi atoma u pitanju, [6]. Nekoliko vrijednosti atomske polarizibilnosti vidljivo je u tablici 2.1.

H	He	Li	Be	C	Ne	Na	Ar	K	Cs
0.667	0.205	24.3	5.60	1.76	0.396	24.1	1.64	43.4	59.6

Slika 2.1: Atomske polarizibilnosti ($\alpha/4\pi\epsilon_0$, u jedinicama $10^{-30}m^3$).

U *Handbook of Chemistry and Physics*, 78th ed. (Boca Raton: CRC Press, Inc., 1997).
Preuzeto iz [6]

Već spomenuti neutralni atom na početku nije imao dipolni moment \vec{p} , već je ovaj induciran primjenom električnog polja (slika 2.2a). Neke molekule, zbog svoje simetrije koja odstupa od sferične, imaju ugrađene stalne dipolne momente, primjerice molekula vode, kod koje elektroni imaju tendenciju skupljati se oko atoma kisika (slika 2.2b). Uzevši u obzir da je molekula „savinuta” pod kutem od 105° , to ostavlja negativni naboj na jednoj strani središnje osi i pozitivni naboj na drugoj [6]. Molekule sa stalnim dipolnim momentom, poput vode, bez prisustva polarizirajućeg električnog polja, zovu se dipolne molekule [7].



Slika 2.2: (a) Inducirani dipolni moment [7], (b) permanentni dipolni moment molekule vode [6]

Pronađe li se polarna molekula u uniformnom električnom polju kao na slici 2.2a, na pozitivan i negativan naboj dipola djelovat će Coulombova sila, odnosno sila na pozitivan naboj $\vec{F}_+ = q\vec{E}$ poništiti će se sa silom koja djeluje na negativan naboj $\vec{F}_- = -q\vec{E}$. Neće biti translacije dipola, no postojat će moment sile koji teži poravnati molekulu s električnim poljem [6]:

$$\vec{\tau} = \vec{p} \times \vec{E}. \quad (2.3)$$

Još jedan način da se izrazi interakcija dipola s električnim poljem jest preko potencijalne energije:

$$V = -\vec{p} \cdot \vec{E} = -pE \cos(\theta), \quad (2.4)$$

gdje je V potencijalna energija dipola. Vidimo da energija ovisi o kutu θ između smjerova dipolnog momenta i polja te da varira između minimuma $-pE$ kad su dipol i polje poravnati i maksimuma $+pE$ kad je dipol orijentiran u suprotnom smjeru od polja. Proizlazi da je najpogodnija orijentacija kad su dipol i električno polje paralelni, jer je u tom slučaju potencijalna energija najmanja [7].

Kad se raspravlja o dielektričnim materijalima, uobičajeno je raspravljati o polarizaciji materijala, definiranoj kao dipolni moment po jedinici volumena. Ako pretpostavimo da kristal ima N molekula po jedinici volumena te da svaka molekula ima dipolni moment \vec{p} , slijedi da je polarizacija kristala dana s:

$$\vec{P} = N\vec{p} = N\alpha\vec{E}. \quad (2.5)$$

Važno je napomenuti da većina dielektrika ima ukupnu polarizaciju jednaku nuli ako se materijal ne nalazi u električnom polju. Premda se kristal sastoji od stalnih dipola, ti će dipoli biti nasumično orijentirani radi termalnih učinaka na $T \neq 0$ [6, 7].

Dakle, ako pretpostavimo da je kristal u termalnoj ravnoteži te uključimo električno polje, to će polje djelovati na dipole u kristalu i svaki dipol će se htjeti orijentirati u smjeru električnog polja (odnosno, u slučaju atoma, inducirat će se dipolni moment) što će uzrokovati stalnu, neiščezavajuću ukupnu polarizaciju u kristalu. Strogo rečeno, promjena orijentacije dipola nije trenutna. Oni će se orijentirati prateći neku jednadžbu gibanja prikladnu određenoj vrsti sustava (dipoli će osjećati efektivno trenje pri promjeni orijentacije [7]); potrebno je neko vrijeme prije nego sustav dođe u ravnotežno stanje s primijenjenim električnim poljem. Karakteristično vrijeme saturacije polarizacije je τ [8]. Za tijelo koje u električnom polju dobiva makroskopsku neiščezavajuću polarizaciju kažemo da je polarizirano.

Kad se medij polarizira, njegova elektromagnetska svojstva se mijenjaju, što možemo izraziti pomoću poznatog izraza:

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}, \quad (2.6)$$

gdje je \vec{D} vektor električnog pomaka, \vec{E} je električno polje [7], a ε_0 je permitivnost vakuumu u SI sustavu jedinica. Također je poznato da vektor električnog pomaka \vec{D} ovisi samo o vanjskim izvorima, a ne o samom mediju i polju u mediju. Odnosno, kako je vidljivo iz Gaussovog zakona za medije u [6],

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho_f, \quad (2.7)$$

vektor dielektričnog pomaka \vec{D} ovisi samo o slobodnom naboju ρ_f . Slijedi da za vanjsko polje E_0 , odnosno za polje izvan dielektrika mora vrijediti:

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E}_0 \quad (2.8)$$

te usporedimo li izraze (2.6) i (2.8) dobiva se izraz (2.9), koji pokazuje da je efekt polarizacije promjena električnog polja unutar medija. Obično je rezultat smanjenje polja unutar medija [7], no postoje posebni slučajevi kad to ipak ne vrijedi [7, 8].

$$\vec{E} = \vec{E}_0 - \frac{1}{\varepsilon_0} \vec{P} \quad (2.9)$$

Dalje, izraz za dielektrični pomak (2.6) može se zapisati i u obliku:

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E}_0 = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E}_0, \quad (2.10)$$

gdje je ε dielektrična funkcija (permitivnost), a omjer $\varepsilon_r = \varepsilon/\varepsilon_0$ je relativna dielektrična permitivnost. Sve dielektrične i optičke karakteristike tvari zadržane su u ovoj funkciji [7], pa je zato i vrijedi proučavati. Jednostavni primjeri kako izmjeriti dielektričnu konstantu pomoću kondenzatora predstavljeni su u [7–9]. Pretpostavimo da imamo pločasti kondenzator spojen na bateriju bez dielektrika među pločama, kao što je prikazano na 2.3a. Električno polje između ploča kondenzatora E_0 može se

odrediti mjerenjem napona na kondenzatoru V_0 koristeći izraz:

$$E_0 = V_0/L, \quad (2.11)$$

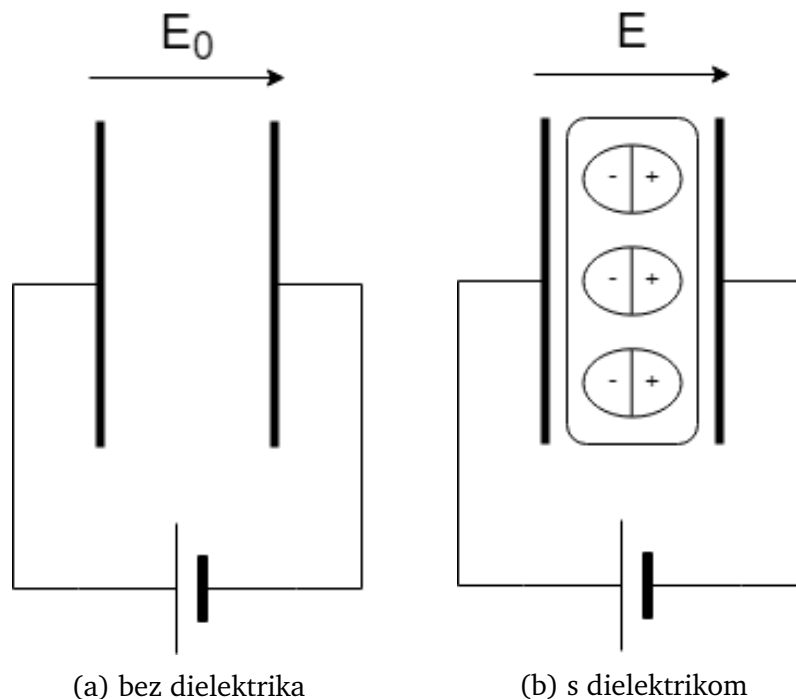
gdje je L razmak između ploča kondenzatora. Kad se između ploča kondenzatora stavi dielektrik, polje E_0 će polarizirati materijal, što će prouzrokovati promjenu polja na neku novu vrijednost E . Ta nova vrijednost opet se može odrediti mjerenjem napona na kondenzatoru V pomoću izraza:

$$E = V/L. \quad (2.12)$$

Dielektrična konstanta je onda dana s:

$$\varepsilon_r = \frac{E_0}{E} = \frac{V_0}{V}. \quad (2.13)$$

Postoji još jedna ekvivalentna definicija: $\varepsilon_r = C/C_0$ [9].



Slika 2.3: Postav za mjerenje relativne dielektrične permitivnosti. Napon se na kondenzatoru prvo mjeri bez dielektrika, a zatim s dielektrikom

Iste informacije o materijalu mogu se iščitati iz električne susceptibilnosti χ . Polarizacija se može zapisati kao:

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi \vec{E} \quad (2.14)$$

a uz aproksimaciju da su \vec{P} i \vec{E} paralelni, od sad zanemarujemo vektorski zapis:

$$P = \varepsilon_0 \chi E. \quad (2.15)$$

Uvrštavanjem dobivenog izraza za polarizaciju (2.15) u izraze (2.6, 2.10) za dielektrični pomak, susceptibilnost χ se može izraziti pomoću dielektrične konstante kao:

$$\chi = \varepsilon_r - 1 \quad (2.16)$$

2.1 Frekventna ovisnost električne susceptibilnosti

Izrazi (2.15, 2.16) vrijede i ako se materijal nalazi u polju koje oscilira kutnom frekvencijom ω ($\omega = 2\pi f$, gdje je f frekvencija u Hz) [8]. U tom slučaju, (2.15) se može prikazati kao:

$$P(\omega) = \varepsilon_0 \chi(\omega) E(\omega) \quad (2.17)$$

Frekventnu ovisnost polarizacije i dielektrične susceptibilnosti možemo objasniti na sljedećem primjeru: recimo da se kristal postavi u električno polje koje oscilira frekvencijom ω . Kao što je prije bilo spomenuto, u kristalu će se dipoli reorijentirati na vremenskoj skali τ . Promijenimo li predznak polju prije nego se uspostavi ravnoteža, polarizacija u sustavu neće dostići ravnotežnu vrijednost P_0 , odnosno $P(\omega) < P_0$, i $\chi(\omega) < \chi_0$ [8]. Frekventna ovisnost dielektrične susceptibilnosti $\chi(\omega)$ određena je jednadžbom gibanja koja upravlja evolucijom ansambla električnih dipolnih momenata koji prate pobudu.

Općenito će $\chi(\omega)$ biti kompleksna funkcija s realnom komponentom $\chi_R(\omega)$ (koja definira komponentu $P(t)$ koja je u fazi s oscilirajućim električnim poljem $E(t) = \text{Re}\{E_0 e^{i\omega t}\} = E_0 \cos(\omega t)$) i s imaginarnom komponentom $\chi_I(\omega)$ (koja je pomaknuta u fazi za $\pi/2$ u odnosu na realnu električnu komponentu) [8].

Konvencionalni izraz dan je s:

$$\chi(\omega) = \chi_R(\omega) - i\chi_I(\omega). \quad (2.18)$$

Ovdje je očito da $\chi_R(\omega)$ određuje ukupno razdvajanje naboja s dielektrikom u obliku makroskopskog kondenzatora. Za značenje imaginarne komponente uzimamo u obzir promjenu polarizacije u vremenu dP/dt . Zbog toga što je iste dimenzionalnosti kao i gustoća struje, promjena polarizacije u vremenu naziva se i polarizacijskom gustoćom struje [8]:

$$\begin{aligned} \frac{dP}{dt} &= [\chi_R - i\chi_I] \frac{dE}{dt} \\ &= [\chi_R(\omega) - i\chi_I(\omega)] i\omega [\cos(\omega t) + i\sin(\omega t)] E_0. \end{aligned}$$

Vidi se da je $\chi_I(\omega)$ brzina promjene realne komponente polarizacijske gustoće struje koja je u fazi s električnim poljem [8]:

$$\begin{aligned} J_{pol}(t) &= \chi_I(\omega) \omega E_0 \cos(\omega t) \\ &= \sigma_{AC}(\omega) E_0 \cos(\omega t) \end{aligned}$$

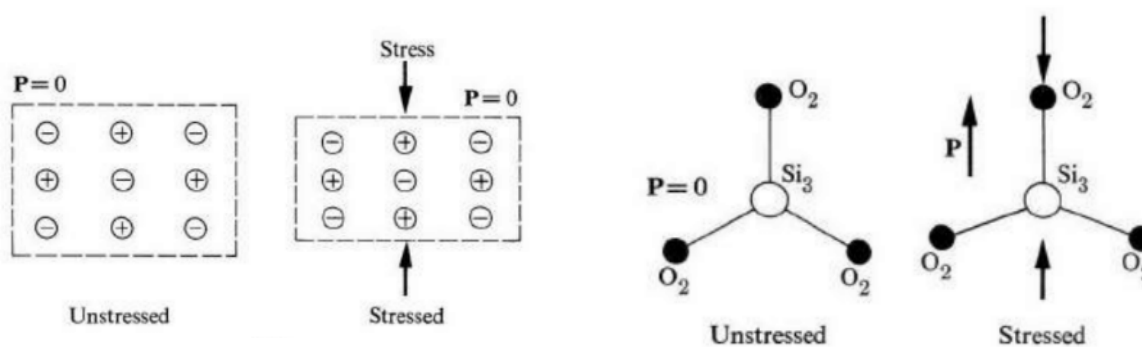
gdje je $\chi_I(\omega)\omega = \sigma_{AC}(\omega)$ doprinos izmjeničnoj vodljivosti zbog polarizacijskog odziva električnom polju. Ako se prisjetimo Jouleovog zakona o termalnoj disipaciji snage električne struje, onda proizlazi da je $\chi_I(\omega)\omega E_0^2$ disipirana energija po jediničnom volumenu zbog stvaranja ukupne polarizacije (od strane električnog polja) ili gustoća disipacije energije. Zbog toga je imaginarna susceptibilnost $\chi_I(\omega)$ poznata kao komponenta disipacije energije [8] te se pojavljuje kad električno polje vrši rad nad dielektrikom kako bi se proizvela ukupna gustoća dipolnog momenta. Dio te energije pohranjen je u razdvajanju naboja i može se vratiti na jednak način kao i elastična energija pohranjena u opruzi. Ostatak energije upotrijebljen je za prevladavanje trenja koje se protivi uspostavljanju ukupne gustoće dipolnog momenta i ta energija je predana dielektriku u nepovratnom obliku, odnosno disipirana je unutar dielektrika [8].

3 Fizika feroelektrika

3.1 Piezoelektričnost

Pojam piezoelektričnost odnosi se na činjenicu da se unutar kristala stvara električno polje kad je deformiran. Mjerenjem razlike nastalog potencijala moguće je odrediti električno polje. Suprotan efekt, odnosno da promjenom električnog polja kristal postane deformiran, također je uočen [7].

Deformacija usred piezoelektričnosti je mala, u smislu da polje od $1000V/cm$ jednoj kvarcnoj šipki duljine $1cm$ smanji duljinu za 1\AA , odnosno, proizvodi deformaciju faktora 10^{-7} . S druge strane, čak za malu deformaciju moguće je proizvesti velika električna polja [7]. Mikroskopski izvor piezoelektričnosti leži u pomaku ionskih naboja u kristalu. Bez prisustva deformacije, raspodjela naboja u ćelijama kristala je simetrična, a unutarnje električno polje jednako je nuli. No, kad je kristal deformiran, naboji će se pomaknuti. S obzirom na to da raspodjela naboja više nije simetrična, stvorit će se polarizacija i popratno električno polje [7].



(a) kubična rešetka s centrom inverzije ne pokazuje piezoelektrični efekt

(b) izvor piezoelektričnosti u kvarcu: kristal nema centar inverzije

Slika 3.1: Kristal s centrom inverzije pokazuje piezoelektrični efekt. Slike preuzete iz [7]

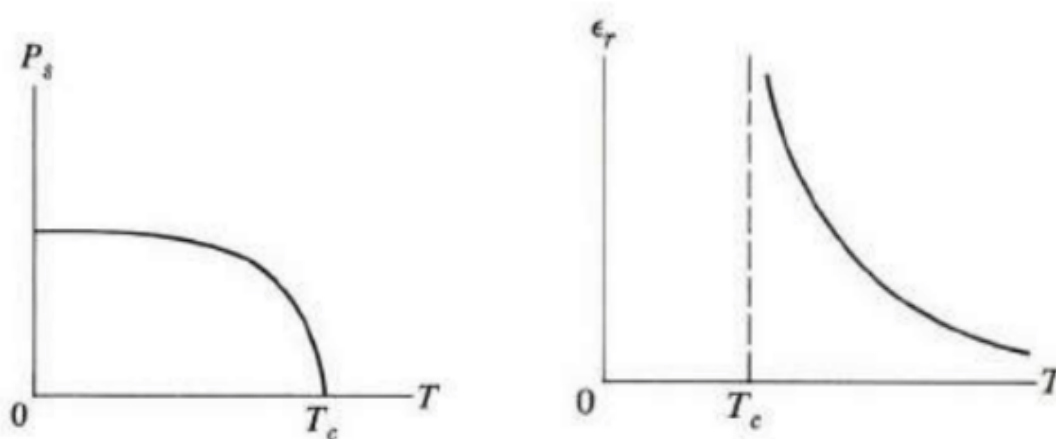
Zato tvar može biti piezoelektrik jedino ako jedinična ćelija nema centar inverzije [7]. Na primjer, slika 3.1a prikazuje slučaj kad je u kristalu prisutan centar inverzije. Kubična rešetka je deformirana, no centar inverzije je očuvan, te se kao posljedica ne stvara polarizacija. No, kad ne postoji centar inverzije, kao na slici 3.1b, deformacija kristala će stvoriti polarizaciju [7].

3.2 Feroelektričnost

Neki piezoelektrični materijali su feroelektrični, no svi feroelektrični materijali su piezoelektrici. Kod feroelektrika se javlja spontana polarizacija, to jest stvara se polarizacija bez utjecaja vanjskog polja. Ovaj fenomen je analogan feromagnetima i spontanoj magnetizaciji koja se javlja u njima, a zove se feroelektričnost. Feroelektrike karakterizira dielektrična konstanta koja se mijenja s temperaturom prema:

$$\varepsilon_r = B + \frac{C}{T - T_C}, \quad T > T_C, \quad (3.1)$$

gdje su B i C konstante neovisne o temperaturi. Relacija (3.1) zove se Curie-Weiss-ov zakon, a parametri C i T_C su Curieva konstanta i Curieva temperatura. Navedeno ponašanje vrijedi za $T > T_C$. U slučaju $T < T_C$, materijal postaje spontano polariziran, to jest stvara se polarizacija bez utjecaja vanjskog polja [7].



(a) polarizacija u ovisnosti o temperaturi T (b) dielektrična konstanta ε_r u ovisnosti o temperaturi T

Slika 3.2: Temperaturna ovisnost polarizacije i dielektrične funkcije o temperaturi. Slike preuzete iz [7]

Na temperaturi T_C javlja se fazni prijelaz, dok se na $T > T_C$ tvar nalazi u paraelektričnoj fazi, gdje su elementarni dipoli u ćelijama kristala nasumično orijentirani. Za ovu fazu izraz (3.1) predstavlja dielektričnu funkciju prikazanu na slici 3.2b. Na temperaturama nižim od kritične T_C , elementarni dipoli međusobno djeluju jedan na drugi, što uzrokuje unutrašnje električno polje koje usmjerava dipole. Smjer polja i pripadna polarizacija leže u određenoj povoljnoj orijentaciji u kristalu. Slika 3.2a prikazuje promjenu spontane polarizacije P_s na temperaturama $T < T_C$. Polarizacija postupno raste kako temperatura pada [7]. Drugi član izraza (3.1) obično je mnogo

veći od prvog člana, gdje je $B \simeq 5$, dok je $\varepsilon_r \simeq 1000$ ili više blizu kritične temperature. Zato se član B može zanemariti i izraz (3.1) postaje:

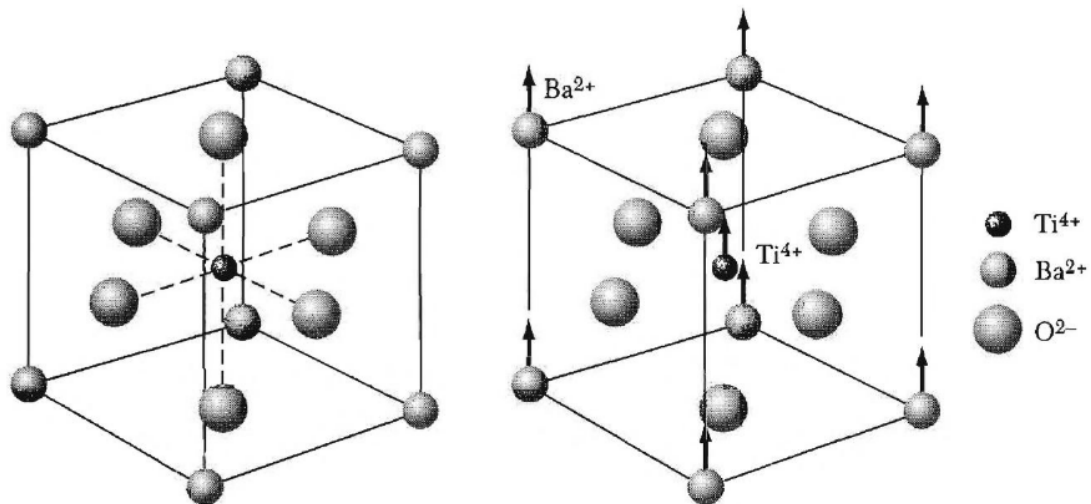
$$\varepsilon_r = \frac{C}{T - T_C}. \quad (3.2)$$

Postoje tri glavne grupe feroelektrika: grupa Rochelleovih soli, grupa kalij dihidrogen fosfata (KDP) i grupa perovskita predvođena barijevim titanatom (BaTiO_3). Slika 3.3 daje podatkovni pregled za navedene grupe. Od posebnog je značaja upravo barijev titanat, koji ima $\varepsilon_r \simeq 10^5$ blizu kritične temperature T_C [7].

Ferroelectric Data					
Crystal	Chemical formula	T_C (°K)	C , °K	P_s , coul/m ²	
Rochelle-salt group	$\text{NaK}(\text{C}_4\text{H}_4\text{O}_6) \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	297 (upper) 255 (lower)	178	267×10^{-5}	[at 278°K]
	$\text{LiNH}_4(\text{C}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot \text{H}_2\text{O})$	106		220	[95]
KDP group	KH_2PO_4	123	3100	5330	[96]
	KD_2PO_4	213		9000	—
	RbH_2PO_4	147		5600	[90]
	CsH_2AsO_4	143		—	—
Perovskites	BaTiO_3	393	1.7×10^5	26,000	[296]
	SrTiO_3	32		3000	[4]
	WO_3	223		—	—

Slika 3.3: Tablica prikazuje vrijednosti Curieove temperature i polarizacije za neke tvari u trima glavnim grupama feroelektrika. Slika preuzeta iz [7]

Ovisno o vrsti faznog prijelaza, feroelektrike također dijelimo na klasu s faznim prijelazima red-nered i klasu s pomačnim faznim prijelazom. Feroelektrici s faznim prijelazima red-nered karakterizirani su vodikovim vezama kod kojih je gibanje protona vezano uz svojstva feroelektrika [10], primjerice kod kalij dihidrogen fosfata (KH_2PO_4). Kod takvih faznih prijelaza dolazi do promjene simetrije zbog redistribucije čestica po mogućim pozicijama unutar ćelije kristala. Kod feroelektrika s pomačnim prijelazom dolazi do pomaka čestica u kristalu [11]. Ovoj klasi pripadaju kristali s ionskom strukturom, poput perovskita [10]. Primjerice, BaTiO_3 u paraelektričnoj fazi ima kubičnu strukturu te spuštanjem temperature ispod T_C dolazi do pomaka Ba^{2+} i Ti^{4+} iona (slika 3.4). Pomak iznosi oko 0.15 \AA , no dovoljan je da proizvede opaženu polarizaciju.



Slika 3.4: Struktura BaTiO_3 . Struktura (lijevo) je kubična s ionima Ba^{2+} u kutevima, O^{2-} ionima na licima, te Ti^{4+} ionima u središtu. Ispod kritične temperature T_C , ioni Ba^{2+} i Ti^{4+} pomiču se u odnosu na ione O^{2-} te se razvija dipolni moment (desno). Slika preuzeta iz [10]

Feroelektrične domene

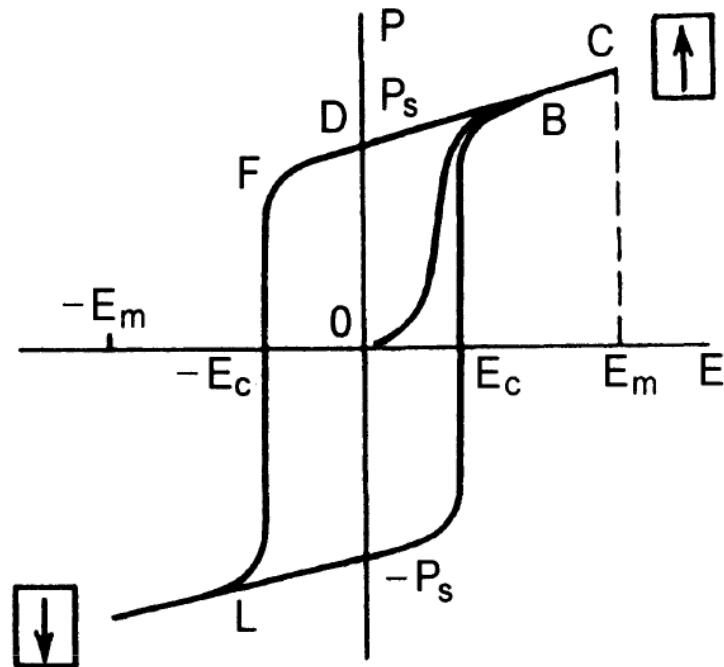
Tvar koja je u feroelektričnoj fazi bit će sponatno polarizirana, no smjer polarizacije nije jednolik kroz cijeli uzorak. Materijal je podijeljen u mnoštvo manjih domena i svaka od njih ima nepromjenjivu polarizaciju drugačiju od ostalih. Konačni efekt je iščezavanje ukupne polarizacije u materijalu u ravnotežnom stanju (slika 3.5) [7].



Slika 3.5: Domenska struktura nepolariziranog feroelektričnog materijala. Slika preuzeta iz [11]

No, kad se primijeni električno polje, domene koje imaju polarizaciju paralelnu s poljem rastu, a one suprotne orijentacije se smanjuju. Taj proces rasta i smanjenja

domena nastavlja se kako se polje pojačava, sve dok se cijeli materijal ne polarizira (polarizacija postaje saturirana, točka C, slika 3.6) [7]. Nadalje, kako se polje sma-



Slika 3.6: Histeretska ovisnost polarizacije feroelektričnog kristala o električnom polju. Slika preuzeta iz [11]

njuje, polarizacija se neće smanjivati po već ocrtanoj krivulji OC, već će pratiti krivulju CD kao što je prikazano na slici 3.6. Čak i kad se električno polje smanji na nulu, materijal ostaje polariziran. Da bi se polarizacija u potpunosti uklonila, potrebno je negativno električno polje $-E_c$, poznato i kao koercitivno polje. Kristal pokazuje histeretsko ponašanje. Drugim riječima, kako se električno polje periodično mijenja, polarizacija opisuje krivulju prikazanu na slici 3.6, zvanu krivulja histereze [7].

4 Landauova teorija i fazni prijelazi

Jedan od pristupa kojim opisujemo navedena feroelektrična svojstva i fazni prijelaz između feroelektrične i paraelektrične faze jest u okviru Landauove teorije. Uzimajući u obzir samo termodinamički opis, Landauova teorija uspješno daje Curie-Weissovo ponašanje u paraelektričnoj fazi, spontanu polarizaciju te histerezu u feroelektričnoj fazi. Za početak, moramo odabrati parametar uređenja koji će biti jednak nuli u neuređenoj fazi i različit od nule u uređenoj fazi [12]. Kod feroelektrika, takvo ponašanje zadovoljava polarizacija. U paraelektričnoj fazi, polarizacija je jednaka nuli bez prisustva vanjskog električnog polja, dok se u feroelektričnoj fazi javlja spontana polarizacija, također bez prisustva vanjskog polja. Prijelaz između feroelektrične i paraelektrične faze može biti prvog ili drugog reda, a primjenom električnog polja može se promijeniti vrsta prijelaza [13]. Također, pretpostavljamo da je polarizacija u našem modelu uniformna, što se uklapa u okvir Landau teorije. Ova pretpostavka je također u skladu s teorijom srednjeg polja [12].

Sad možemo konstruirati slobodnu energiju $U(T, P)$. U blizini kritične temperature T_0 radimo Taylorov razvoj u red potencija po parametru uređenja P :

$$U(T, P) = U_0 + \frac{1}{2}\alpha(T)P^2 + \frac{1}{4}\beta P^4 + \frac{1}{6}\gamma P^6 + \dots \quad (4.1)$$

Radi simetrije, u sustavu nisu dozvoljene neparne potencije polarizacije. U izrazu (4.1), U_0 predstavlja doprinose od ostalih stupnjeva slobode [13], no mi ćemo radi jednostavnosti baždariti ovu referentnu energiju na nulu. Može se pretpostaviti da je sav netrivialan temperaturni doprinos sadržan u prvom članu razvoja, odnosno u $\alpha(T)$ [12]. Uz to, zanemarujemo moguće mehaničke utjecaje jer, kao što je već rečeno u poglavlju 3.1, piezoelektričnost će imati mali učinak na sustav s obzirom da radimo sa slabim električnim poljima, uz pretpostavku idealnih uvjeta. Konačno, zadržat ćemo članove do šestog reda potencije, jer je toliko potrebno da se dobro opišu fazni prijelazi prvog i drugog reda u feroelektricima. Izraz za slobodnu energiju, uz pretpostavku sustava u prisustvu električnog polja E , je dan s:

$$U(T, P) = \frac{1}{2}\alpha(T)P^2 + \frac{1}{4}\beta P^4 + \frac{1}{6}\gamma P^6 - E \cdot P. \quad (4.2)$$

Ovdje $\alpha(T)$ ima oblik

$$\alpha(T) = \frac{1}{\varepsilon_0 C} (T - T_0) \quad (4.3)$$

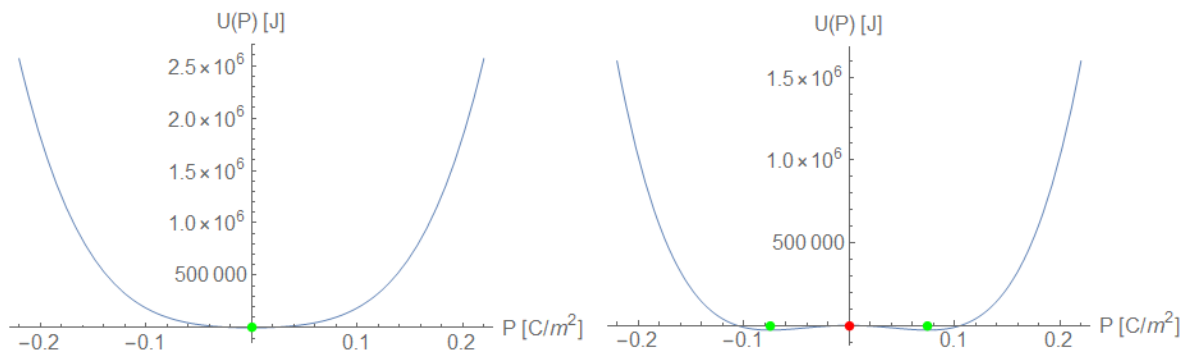
gdje su konstanta C Curie-Weissova konstanta, a kritična temperatura T_0 je Curieva temperatura. Ravnotežno stanje sustava pronalazimo minimiziranjem slobodne energije (4.2) te analizom stabilnosti dobivenih fiksnih točaka [14–16]:

$$\frac{\partial U(T, P)}{\partial P} = 0 \quad \text{i} \quad \left. \frac{\partial^2 U(T, P)}{\partial P^2} \right|_{P=P_0} > 0 \quad (4.4)$$

4.1 Fazni prijelazi u feroelektricima

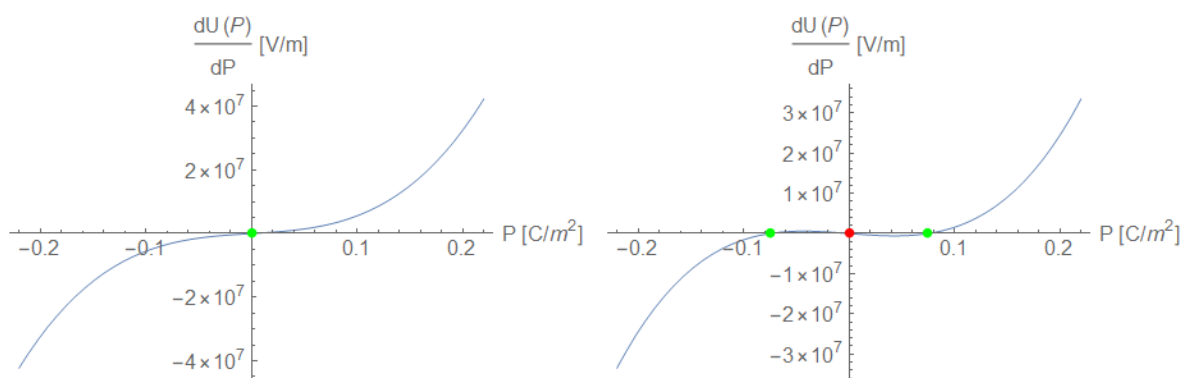
Točke faznog prijelaza su točke u parametarskom prostoru sustava (općenito temperatura, tlak, magnetsko polje itd.) ili skupovi točaka koji su diskontinuirane derivacije slobodne energije po parametru uređenja. Odabrane funkcije termodinamičkog sustava (susceptibilnost, toplinski kapacitet, itd.) zato nisu glatke kad sustav prelazi iz jedne faze u drugu. Mogući singulariteti povezani s U su prekidi u prvoj derivaciji po parametru uređenja, npr. $\partial U / \partial x$, odnosno u drugom redu $\partial^2 U / \partial x^2$. Ove dvije vrste prekida definiraju fazne prijelaze prvog reda i drugog reda, često zvane diskontinuirani i kontinuirani [12].

Feroelektrici se mogu svrstati u dvije glavne kategorije po pitanju faznih prijelaza: u feroelektrike poput triglicin sulfata (TGS) s faznim prijelazima drugog reda i one poput BaTiO₃ i drugih perovskita s faznim prijelazom prvog reda. Ono što će odrediti koji će se fazni prijelaz manifestirati u sustavu jesu parametri α, β, γ , čije se vrijednosti mogu odrediti eksperimentalno [13–15]. S obzirom na temperaturnu ovisnost, $\alpha(T)$ će prijelazom iz paraelektrične u feroelektričnu fazu promijeniti predznak iz pozitivnog u negativni, dok su β i γ ovisni o feroelektričnom materijalu. Za fazni prijelaz drugog reda uzimamo hipotetske vrijednosti $|\alpha| = 2 \times 10^7 \text{ Vm/C}$, $\beta = 35.6 \times 10^8 \text{ Vm}^5/\text{C}^3$, $\gamma = 0$, $T_0 = 120^\circ\text{C}$.



(a) slobodna energija u paraelektričnoj fazi za $\alpha > 0, \beta > 0, T > T_0$

(b) slobodna energija u feroelektričnoj fazi za $\alpha < 0, \beta > 0, T < T_0$



(c) prva derivacija slobodne energije u paraelektričnoj fazi

(d) prva derivacija slobodne energije u feroelektričnoj fazi

Slika 4.1: Ovisnost slobodne energije i prve derivacije slobodne energije za odabrane parametre razvoja $|\alpha|, \beta, \gamma$. Zelene točke označavaju vrijednosti polarizacije stabilnih fiksnih točki, a crvene točke označavaju nestabilne fiksne točke. Slike su nacrtane u programskom jeziku *Mathematica*

U ravnotežnim uvjetima izraz (4.2), bez prisustva električnog polja ($E = 0$) i uz $\gamma = 0$, postaje

$$\frac{\partial U(P)}{\partial P} = \alpha P + \beta P^3 = 0. \quad (4.5)$$

Rješavanjem gornje jednadžbe dobivaju se tri rješenja

$$P = 0 \quad (P) \quad (4.6)$$

$$P^2 = -\frac{\alpha}{\beta} \quad (F) \quad (4.7)$$

U paraelektričnoj fazi ($T > T_0$), gdje je $\alpha > 0$, jedino realno rješenje je (4.6) i odgovara minimumu energije (slika 4.1a). To znači da će ukupna polarizacija sustava u ravnotežnom položaju u paraelektričnoj fazi težiti nuli. Linearna dielektrična suscep-

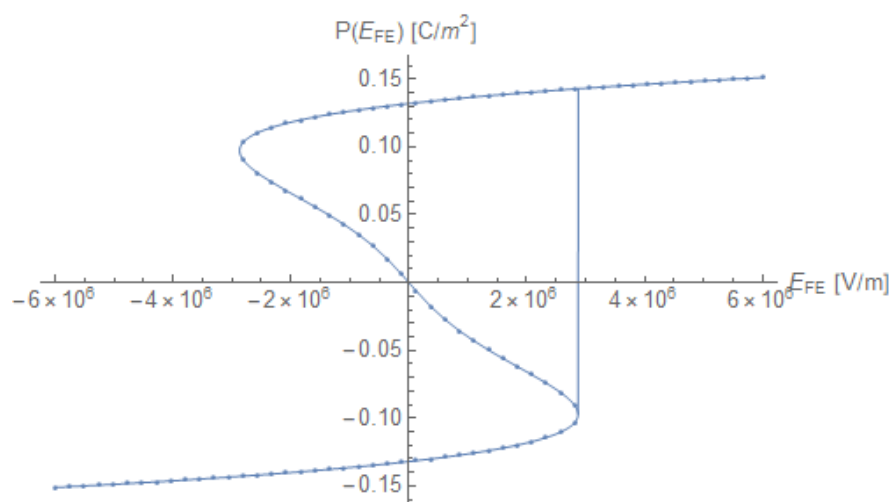
tibilnost χ može se dobiti još jednim deriviranjem i uzimanjem stabilnog rješenja [14]

$$\frac{\partial^2 U(T, P)}{\partial P^2} = \frac{1}{\chi} = \frac{C}{T - T_0}, \quad T > T_0 \quad (4.8)$$

što daje Curie-Weissovo ponašanje u paraelektričnoj fazi. Snižanjem temperature, sustav prelazi iz paraelektrične u feroelektričnu fazu ($T < T_0$), te α mijenja predznak u negativan. Sva rješenja postaju realna, no rješenje (4.6) postaje nestabilno, dok druga dva (4.7) postaju stabilna, odnosno postaju novi minimumi slobodne energije, kao što je vidljivo na slikama 4.1c i 4.1d.

Fazne prijelaze prvog reda karakterizira konačan skok parametra uređenja P i entalpije prijelaza. Mnogi feroelektrici tim prijelazom također mijenjaju strukturu, odnosno dolazi do promjene simetrije u sustavu. Ovaj fazni prijelaz opisat ćemo na primjeru BaTiO_3 . Parametre $\alpha = -2 \times 10^7 \text{ Vm}/\text{C}$, $\beta = -35.6 \times 10^8 \text{ Vm}^5/\text{C}^3$, $\gamma = 27 \times 10^{10} \text{ Vm}^9/\text{C}^5$ preuzeli smo iz [4], dok je Curievu temperaturu $T_0 = 120 \text{ }^\circ\text{C}$ moguće pronaći u [7, 16]. Za α se i dalje pretpostavlja da mijenja predznak faznim prijelazom, te ovaj puta pretpostavljamo da je $E \neq 0$. Iz ravnotežnih uvjeta slijedi da je električno polje

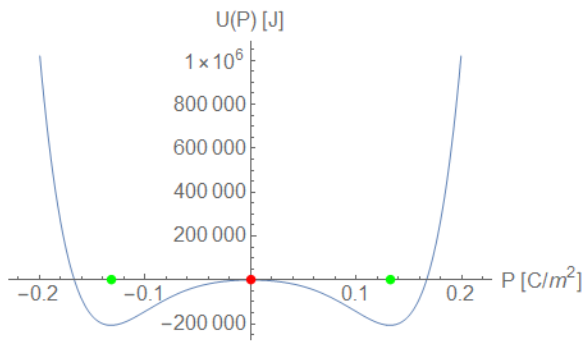
$$E = \frac{\partial U}{\partial P} = \alpha P + \beta P^3 + \gamma P^5 \quad (4.9)$$



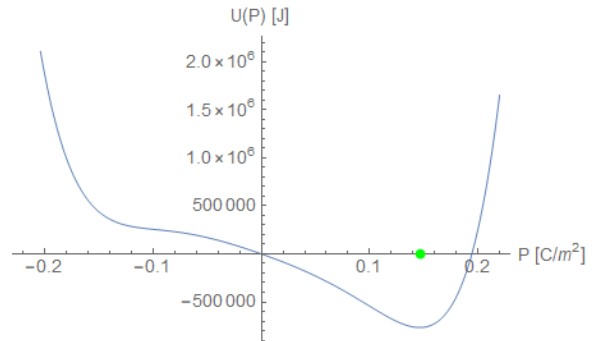
Slika 4.2: Histereza u BaTiO₃, za parametre $\alpha = -2 \times 10^7 \text{ Vm/C}$, $\beta = -35.6 \times 10^8 \text{ Vm}^5/\text{C}^3$, $\gamma = 27 \times 10^{10} \text{ Vm}^9/\text{C}^5$. Slika je nacrtana u programskom jeziku *Mathematica*

Dobivena nelinearna jednađžba u feroelektričnoj fazi ($T < T_0$) daje histeretsko ponašanje, jednu od ključnih karakteristika feroelektričnih materijala. Histereza na slici 4.2 pokazuje bistabilnu prirodu polarizacije na intervalu vrijednosti električnih polja. Pozitivne i negativne vrijednosti polarizacije odgovaraju minimumima slobodne energije. Intrinzično feroelektrično koercitivno polje je reda veličine pozitivnog ili negativnog električnog polja na kojoj polarizacija poprimi jednu vrijednost i promijeni smjer. Izmjerena koercitivna polja u pravim feroelektričnim materijalima su reda veličine manje nego intrinzične vrijednosti dobivene iz Landauove teorije. Teorija ne uračunava ekstrinzični mehanizam preokretanja lokalne polarizacije kroz nukleaciju popraćenu propagacijom i rastom domena [15].

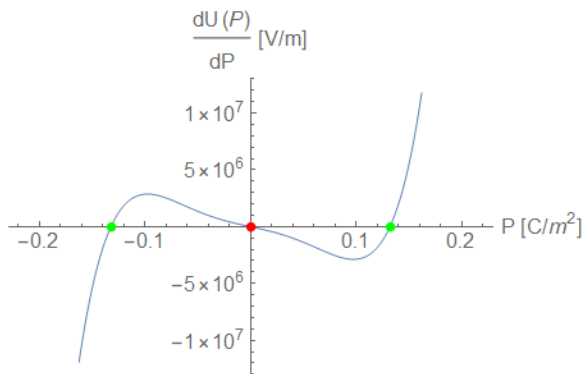
Na slikama 4.3 vidljive su slobodne energije za slučaj kad nema električnih polja ($E < E_c$) te slučaj kad je električno polje veće od koercitivnog polja ($E > E_c$).



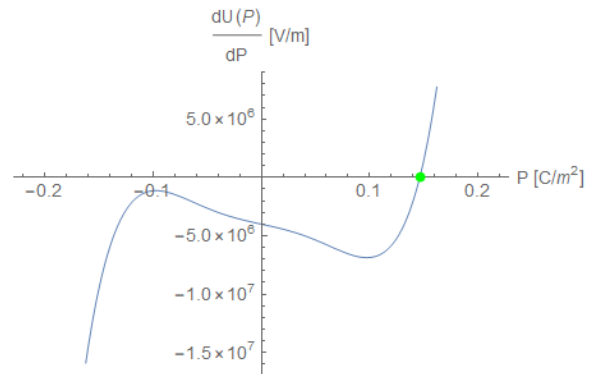
(a) slobodna energija u feroelektričnoj fazi za parametre BaTiO₃ $\alpha < 0, \beta < 0, \gamma > 0, E = 0$



(b) slobodna energija u feroelektričnoj fazi za parametre BaTiO₃ $\alpha < 0, \beta < 0, \gamma > 0, E = 4 \times 10^6 \text{ V/m}$



(c) prva derivacija slobodne energije u feroelektričnoj fazi za parametre BaTiO₃ $\alpha < 0, \beta < 0, \gamma > 0, E = 0$



(d) prva derivacija slobodne energije u feroelektričnoj fazi za parametre BaTiO₃ $\alpha < 0, \beta < 0, \gamma > 0, E = 4 \times 10^6 \text{ V/m}$

Slika 4.3: Ovisnost slobodne energije i prve derivacije slobodne energije za odabrane parametre razvoja $|\alpha|, \beta, \gamma$ za BaTiO₃ u feroelektričnoj fazi, s $E = 0$, te za električno polje veće od koercitivnog polja $E = 4 \times 10^6 \text{ V/m} > E_c$. Zelene točke označavaju vrijednosti polarizacije stabilnih fiksnih točki, crvene točke označavaju nestabilne fiksne točke. Slike su nacrtane u programskom jeziku *Mathematica*

5 Dielektrični odziv spoja FE-DE

Landauova teorija predstavlja statički opis feroelektrika u ravnotežnom stanju. Za opis dinamike koristit ćemo se takozvanom Landau-Khalatnikovom jednadžbom. U svom originalnom radu, Landau i Khalatnikov [17] uzimaju sustav s faznim prijelazom drugog reda i razvojem termodinamičkog potencijala oblika navedenog u (4.2), pod prije navedenom pretpostavkom temperaturne ovisnosti koeficijenata. Autori pretpostavljaju da se sustav nalazi u niskotemperaturnoj fazi ($T < T_\lambda$) u kojoj je parametar uređenja neiščezavajući. Zatim, sustavu u neravnotežnom stanju, evoluciju parametra uređenja prema ravnotežnom stanju daju jednadžbom:

$$\frac{d\eta}{dt} = \gamma \frac{\partial \Phi}{\partial \eta}, \quad (5.1)$$

gdje η predstavlja parametar uređenja, Φ termodinamički potencijal te γ transportni koeficijent. Jednadžba (5.1) je poznata kao Landau-Khalatnikova jednadžba. Pored toga, autori daju karakteristično relaksacijsko vrijeme oblika

$$\tau = \frac{1}{\gamma\alpha}. \quad (5.2)$$

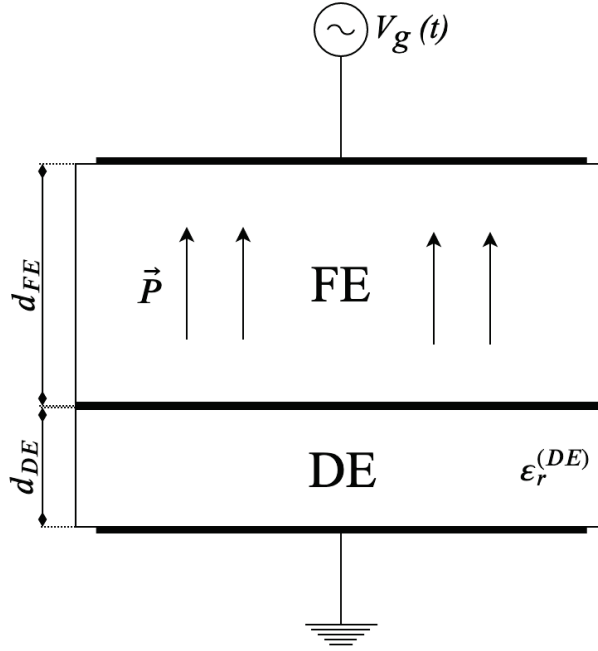
Kod feroelektrika, Landau-Khalatnikova jednadžba poprima oblik:

$$\rho \frac{dP}{dt} = -\alpha P - \beta P^3 - \gamma P^5 + E, \quad (5.3)$$

gdje je $\rho = 1/\gamma$ kinetički koeficijent. Jednadžba govori da je regresija polarizacije dP/dt prema ravnotežnom stanju brža što je veća 'termodinamička sila' $\partial U/\partial P$ koja je tjera [18]. Prema tome, kinetički koeficijent predstavlja efektivni otpor pri reorijentaciji dipola u sustavu, u jedinicama električne otpornosti [19].

Nadalje, radimo u feroelektričnoj fazi na sobnoj temperaturi te radi jednostavnosti uzimamo da je $\alpha = -|a|$. Relaksacijsko vrijeme τ kod feroelektrika ima značenje polarizacijskog „switching” vremena, za koje se eksperimentalno utvrdilo da je reda $70 \sim 90$ ps [4], te se pomoću izraza (5.2) dobiva kinetički koeficijent $\rho = \tau|a|$. Za „switching” vrijeme uzimamo da je $\tau = 70$ ps, iz čega se dobiva kinetički koeficijent $\rho = 1.4 \times 10^{-3} \Omega \text{ m}$.

5.1 Model stabilnog rješenja s negativnim kapacitetom



Slika 5.1: Shematski prikaz spoja feroelektrik-dielektrik. U izračunima uzimamo parametre koji odgovaraju realnim materijalima BaTiO₃ (FE) i dielektriku Al₂O₃ (DE). Debljine slojeva iznose $d_{FE} = 55$ nm i $d_{DE} = 7$ nm, a relativna dielektrična permitivnost Al₂O₃ iznosi $\epsilon_r^{DE} = 9.1$

Jedan od načina da se radna točka stabilizira na dijelu P-E karakteristike koja odgovara negativnom kapacitetu predložen je u radu Rusu et al. [5], uzimajući u obzir Maxwellove jednadžbe [6] i Tsividisov model MOS tranzistora [20]. Ideja je da se, kao na slici (5.1), na uobičajeni sloj linearnog dielektrika stavi dodatni sloj feroelektrika zbog čega se javlja uvjet stabilizacije. Pod pretpostavkom da na spoju nema zarobljenog naboja, u cijelom sklopu će biti isti dielektrični pomak, odnosno u vektorskom zapisu:

$$\begin{aligned} \vec{D}_{FE} &= \vec{D}_{DE}, \\ \epsilon_0 \vec{E}_{FE} + \vec{P} &= \epsilon_0 \epsilon_r^{(DE)} \vec{E}_{FE}, \end{aligned} \quad (5.4)$$

gdje je $\epsilon_r^{(DE)}$ relativna dielektrična permitivnost dielektričnog sloja. S obzirom na to da radimo s linearnim dielektrikom i s jednoosnim feroelektrikom, zanemarujemo vektorski zapis i pretpostavljamo da su sva polja paralelna. Električna polja E_{FE} i E_{DE} mogu se izraziti preko odgovarajućih padova napona $V_{FE} = E_{FE}/d_{FE}$ i $V_{DE} = E_{DE}/d_{DE}$, gdje su d_{FE} i d_{DE} debljine feroelektričnog sloja i dielektričnog sloja. Uzevši uz to ukupni napon spoja $V_g = V_{FE} + V_{DE}$, drugi izraz iz (5.4) daje uvjet fiksiranja

polarizacije u feroelektričnom sloju

$$P(E_{FE}) = \varepsilon_0 \underbrace{\left[\frac{\varepsilon_r^{DE}}{d_{DE}} V_g - \left(1 + \varepsilon_r^{DE} \frac{d_{FE}}{d_{DE}} \right) E_{FE} \right]}_{\Delta(E_{FE})}. \quad (5.5)$$

Prema [5], dobiven uvjet $\Delta(E_{FE})$ je takozvani „charge line” i predstavlja nabojnu stabilnost sustava pod određenim naponom na vratima tranzistora V_g , te se može napisati kao

$$\Delta(E) = A(t) - B \cdot E, \quad (5.6)$$

s koeficijentima

$$\begin{aligned} A(t) &= \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r^{DE}}{d_{DE}} V_g(t), \\ B &= \varepsilon_0 \left(1 + \varepsilon_r^{DE} \frac{d_{FE}}{d_{DE}} \right). \end{aligned} \quad (5.7)$$

Negativni kapacitet će se pojaviti samo ako je nagib nabojnog pravca (5.6) manji nego nagib feroelektrične polarizacije. U tom slučaju nju se siječe samo u jednoj točki te sustav postaje stabilan. Da bi se vidjelo je li feroelektrik zaista stabilan na negativnom dijelu karakteristike, mora se riješiti sustav jednadžbi određen s (5.6) i (5.3)

$$\begin{aligned} \rho \frac{dP(t)}{dt} + \underbrace{\left(\frac{1}{B} - |a| \right)}_{\alpha_{eff}} P(t) + \beta P(t)^3 + \gamma P(t)^5 - \frac{A(t)}{B} &= 0, \\ E(t) &= -\frac{1}{B} (P(t) - A(t)). \end{aligned} \quad (5.8)$$

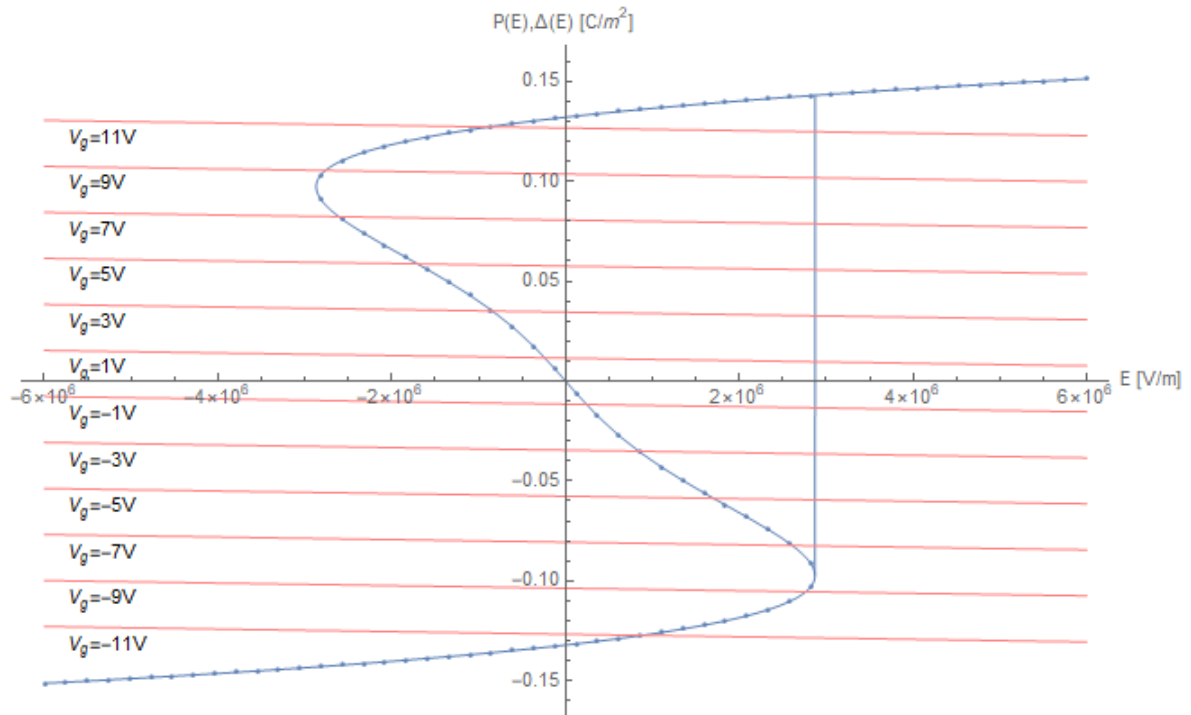
Iz sustava jednadžbi slijedi da je navedeno zadovoljeno jedino ako je koeficijent α_{eff} pozitivan

$$\alpha_{eff} \equiv \frac{1}{B} - |a| > 0, \quad (5.9)$$

što znači da nagib pravca $\Delta(E)$ mora biti manji. To je upravo slučaj za spoj barij titanata i aluminijska oksida (slika 5.2).

Sustav jednadžbi riješit ćemo analitički i numerički. Analitičko rješenje bit će u

linearnoj aproksimaciji, ali će dati glavni uvid u prirodu ovakvog frekventnog odziva. Numeričko rješenje poslužit će za usporedbu s analitičkim te će biti promotreni učinci nelinearnosti na dijelu s negativnim kapacitetom u polarizaciji i u razlici između faza polarizacije i električnog polja.



Slika 5.2: Histeretsko ponašanje polarizacije $P(E)$ u ovisnosti o električnom polju feroelektričnog sloja E , dobiveno iz statične Landau-Khalatnikove jednadžbe (5.3). Nabojne linije $\Delta(E)$, dobivene iz (5.6) uz parametre dane u opisu slike 5.1 i odabirom napona V_g u intervalu između -11 V i 11 V. Iz slike je vidljivo da je ponašanje negativnog kapaciteta održano kod $|V_g| < 8$ V, dok je linearni režim dobro očuvan kod $|V_g| < 2$ V.

5.2 Analitičko linearno rješenje

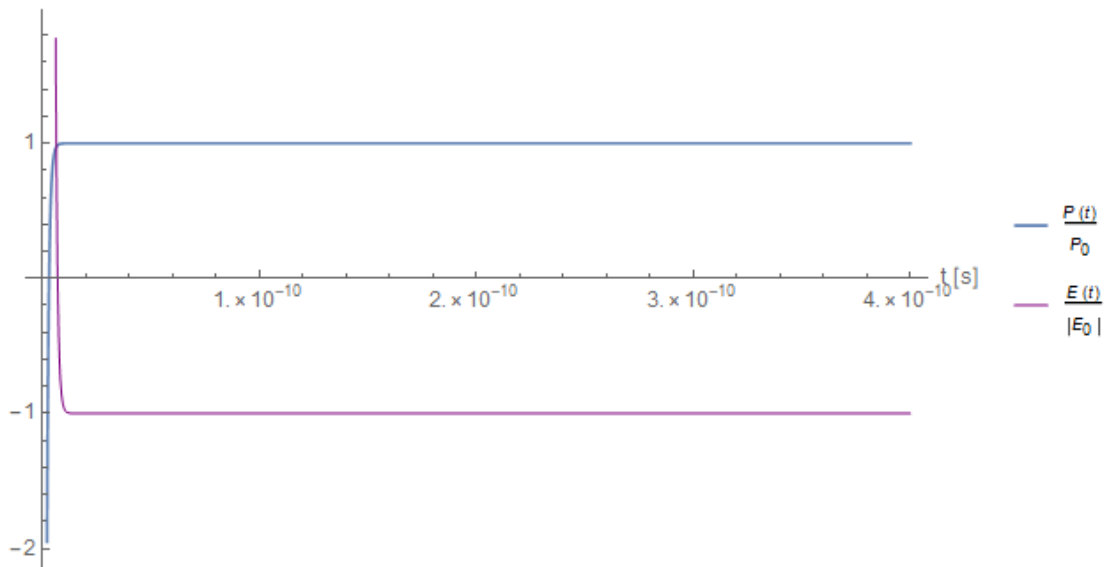
U ovom slučaju zanemarujemo sve članove višeg reda polarizacije sustava (5.8), ($\beta = 0, \gamma = 0$). Pretpostavka vrijedi na dovoljno malim amplitudama oscilacija napona vrata, tako da će radna točka oscilirati na linearnom dijelu $P(E)$ karakteristike oko nule. Prvo, stacionarni slučaj $\dot{P}(t) = 0$, koji se tako može odrediti odabirom konstantnog napona na vratima $V_g(t) = V_{g0}$, odnosno konstanti $A(t) = A_0 \equiv \varepsilon_0 \varepsilon_r^{(DE)} V_0 / d_{DE}$, daje rješenje

$$P = \frac{\frac{A_0}{B}}{\left(\frac{1}{B} - |a|\right)}, \quad (5.10)$$

$$E = -|a|P.$$

Iz već navedenog izraza za polarizaciju (2.15), proizlazi da je dielektrična susceptibilnost feroelektričnog sloja

$$\chi_0 = \frac{P}{\varepsilon_0 E} = -\frac{1}{\varepsilon_0 |a|} < 0. \quad (5.11)$$



Slika 5.3: Polarizacija $P(t)$ i električno polje $E(t)$ dobiveno rješenjem sustava (5.10) za statični napon $V_{g0} = 1$ V te za odabir parametara naveden na slici 5.1 i normalizirani na njihove maksimalne saturirane vrijednosti P_0 i E_0 . $P(t)$ i $E(t)$ su suprotnih predznaka na svim frekvencijama

Dobivena stacionarna susceptibilnost feroelektričnog spoja je negativna, što znači da su polarizacija i električno polje suprotnog smjera, odnosno da je u pitanju stabilnost u području negativnog kapaciteta. Ova susceptibilnost je potpuno realna vrijednost, dok je fazni pomak između polarizacije i električnog polja $-\pi$. Slika 5.3 prikazuje numeričko rješenje u stacionarnom režimu, koje potvrđuje navedeno. Frekventno ovisna dielektrična susceptibilnost feroelektričnog sloja bit će dobivena odabirom harmoničkog napona vrata $V_g(t) = V_0 \cos(\Omega t)$, frekvencije Ω . Uz koeficijent $A(t) = A_0 \cos(\Omega t)$, sustav postaje

$$\begin{aligned} \rho \frac{dP(t)}{dt} + \left(\frac{1}{B} - |a| \right) P(t) &= \frac{A_0}{B} \cos(\Omega t), \\ E(t) &= \frac{1}{B} (A_0 \cos(\Omega t) - P(t)). \end{aligned} \quad (5.12)$$

Dobivena jednačba je diferencijalna jednačba prvog reda, i njezino rješenje određuje se standardnom te iznosi [21]

$$P(t) = \underbrace{\frac{\frac{A_0}{B}}{\alpha_{eff}^2 + (\rho\Omega)^2} [\alpha_{eff} \cos(\Omega t) + (\rho\Omega) \sin(\Omega t)]}_{\text{stacionarno rj. } P_{st.}(t)} + \underbrace{C e^{-\alpha_{eff} \frac{t}{\rho}}}_{\text{tranzijentno rj. } P_{tr.}(t)}. \quad (5.13)$$

Tranzijentno rješenje zanemarujemo za vremena veća od relaksacijskog vremena $t \gg \tau$, koje iznosi

$$\tau = \frac{\rho}{|a|} = \varepsilon_0 \rho |\chi_0|, \quad (5.14)$$

te se uvrštavanjem stacionarnog rješenja u drugu jednačbu sustava pronalazi električno polje. Nadalje, izrazit ćemo $P(t)$ i $E(t)$ u obliku

$$P(t) = A_P \cos(\Omega t + \phi_P), \quad (5.15)$$

$$E(t) = A_E \cos(\Omega t + \phi_E), \quad (5.16)$$

gdje je

$$\begin{aligned}
 A_P &= \frac{\frac{A_0}{B\alpha_{eff}}}{\sqrt{1 + \left(\frac{\rho\Omega}{\alpha_{eff}}\right)^2}}, \\
 \tan \phi_P &= -\frac{\rho\Omega}{\alpha_{eff}}, \\
 A_E &= \frac{\frac{A_0}{B\alpha_{eff}}}{\sqrt{1 + \left(\frac{\rho\Omega}{\alpha_{eff}}\right)^2}} \sqrt{|a|^2 + (\rho\Omega)^2}, \\
 \tan(\phi_E) &= \frac{\frac{\rho\Omega}{\alpha_{eff}}}{B\alpha_{eff} \left(1 + \left(\frac{\rho\Omega}{\alpha_{eff}}\right)^2\right) - 1}.
 \end{aligned} \tag{5.17}$$

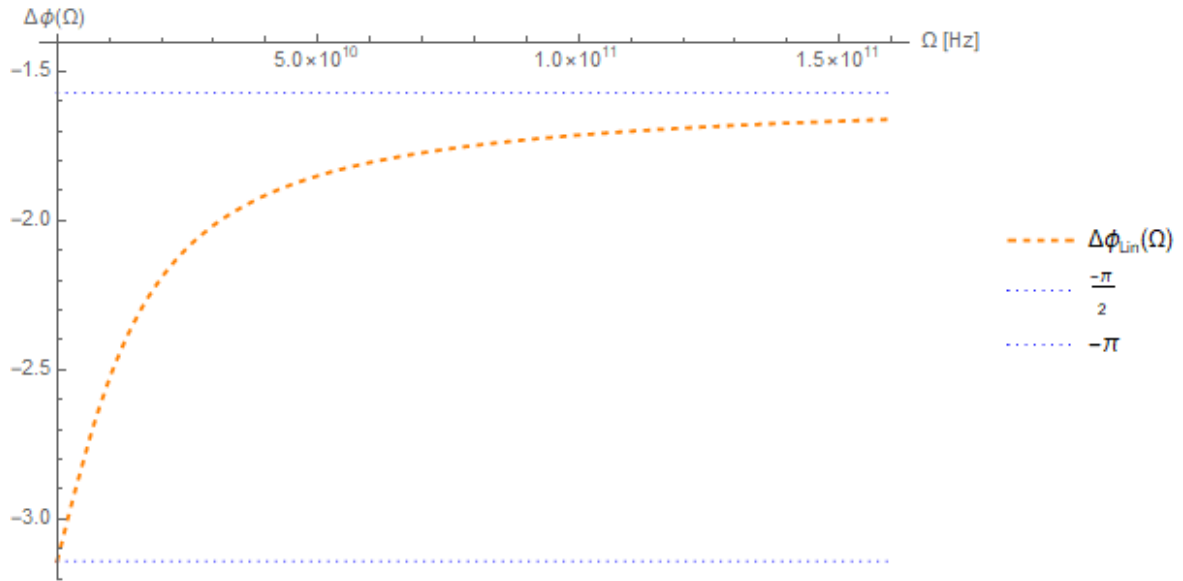
Zatim, izražavanjem faza kao razlika u fazi $\Delta\phi = \phi_P - \phi_E$, pomakom vremenskog ishodišta tako da su $E(t) = A_E \cos(\Omega t)$ i $P(t) = A_P \cos(\Omega t + \Delta\phi)$ i daljnjim uređivanjem izraza uz pomoć trigonometrijske identitete $\cos(\Omega t + \phi) = \cos(\Omega t) \cos(\phi) - \sin(\Omega t) \sin(\phi)$ dobiva se

$$\tan(\Delta\phi) = \frac{\rho\Omega}{|a|}, \tag{5.18}$$

fazni pomak između polarizacije i električnog polja u feroelektričnom sloju. Uzimajući u obzir točne grane arctan funkcije dobiva se

$$\Delta\phi = -\pi + \arctan\left(\frac{\rho\Omega}{|a|}\right). \tag{5.19}$$

$\Delta\phi$ će asimptotski težiti $-\pi$ kad $\Omega \rightarrow 0$, na konačnim frekvencijama $\Delta\phi$ će dati fazni pomak između $-\pi$, $-\pi/2$ i asimptotski će težiti vrijednosti $-\pi/2$ kad $\Omega \rightarrow \infty$.



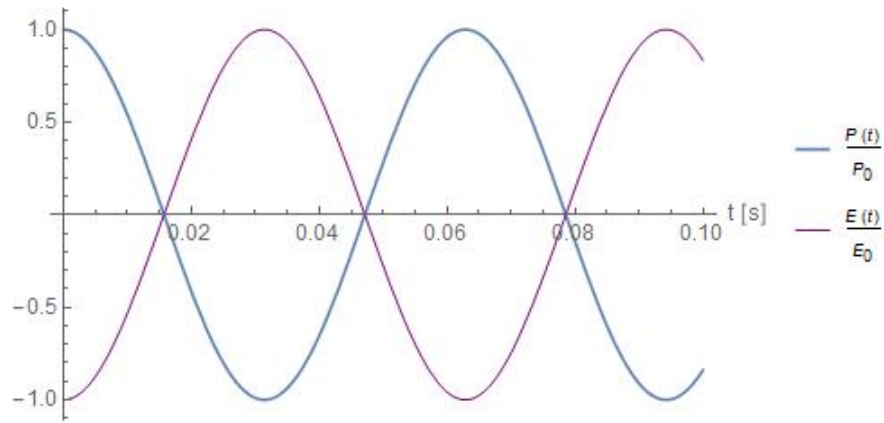
Slika 5.4: Fazni pomak u ovisnosti o frekvenciji. $\Delta\phi(\Omega)$ saturira prema $\pi/2$ s porastom frekvencije. Korišteni su parametri $|a| = 2 \times 10^7$ Vm/C, $\rho = 1.4 \times 10^{-3}$ Ω m

Slike 5.5a i 5.5b pokazuju numerička rješenja $P(t)$ i $E(t)$ na konačnoj frekvenciji i na asimptotskoj granici. Na konačnim frekvencijama, slijedi da je susceptibilnost

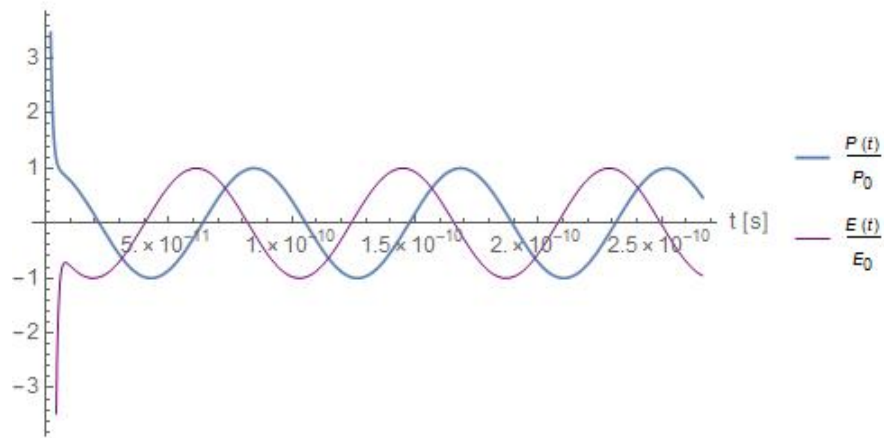
$$\chi(\Omega) = \frac{P(\Omega)}{\varepsilon_0 E(\Omega)}, \quad (5.20)$$

gdje su $P(\Omega)$ i $E(\Omega)$ Fourierovi transformati $P(t)$ i $E(t)$. Proizlazi da je $\chi(\Omega)$ kompleksna veličina s komponentama

$$\begin{aligned} \chi_R(\Omega) &= \frac{1}{\varepsilon_0} \frac{A_P(\Omega)}{A_E(\Omega)} \cos(\Delta\phi(\Omega)), \\ \chi_I(\Omega) &= \frac{1}{\varepsilon_0} \frac{A_P(\Omega)}{A_E(\Omega)} \sin(\Delta\phi(\Omega)). \end{aligned} \quad (5.21)$$



(a)



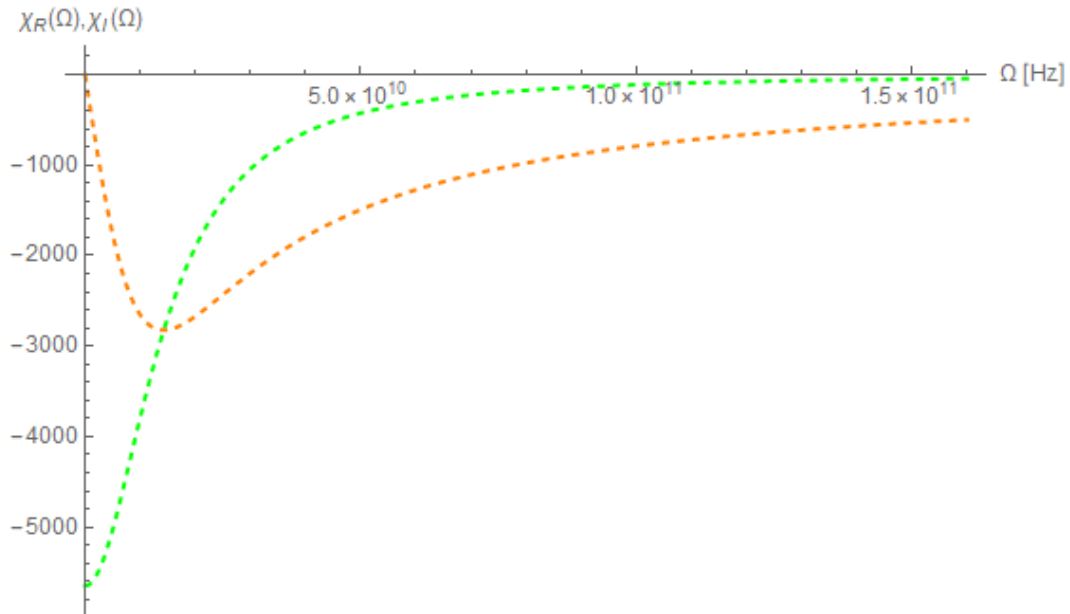
(b)

Slika 5.5: Numeričko rješenje sustava (5.7) za frekvencije (a) $\Omega = 100$ Hz i (b) $\Omega = 75 \times 10^9$ Hz. Vidljiv je fazni pomak opisan na sl. 5.4. Također, oscilacije su približno sinusoidalne, što daje dobru aproksimaciju linearnog režima. Krivulje su dobivene rješavanjem jednadžbe s parametrima $\alpha = -2 \times 10^7$ Vm/C, $\beta = -35.6 \times 10^8$ Vm⁵/C³, $\gamma = 27 \times 10^{10}$ Vm⁹/C⁵, $B = 6.42 \times 10^{-10}$ C/Vm, $Vg_0 = 1$ V, $\rho = 1.4 \times 10^{-3}$ Ω m.

Nakon kraćeg računa, uvrštavajući fazni pomak u izraz (5.21) te uređivanjem pomoću trigonometrijskih identiteta $\sin(x) = \tan(x)/\sqrt{1 + \tan^2(x)}$ i $\cos(x) = 1/\sqrt{1 + \tan^2(x)}$, dobiva se

$$\chi_R(\Omega) = \chi_0 \frac{1}{1 + (\tau\Omega)^2}, \quad (5.22)$$

$$\chi_I(\Omega) = \chi_0 \frac{\tau\Omega}{1 + (\tau\Omega)^2}. \quad (5.23)$$



Slika 5.6: Realna komponenta susceptibilnosti χ_R (zeleno) i imaginarna komponenta susceptibilnosti χ_I (narančasto) u ovisnosti o frekvenciji u linearnom režimu. Korišteni parametri $|a| = 2 \times 10^7$ Vm/C i $\tau = 70$ ps uvršteni su u izraze (5.22), (5.23) i (5.11)

Slika 5.6 prikazuje frekventnu ovisnost susceptibilnosti; može se zaključiti da ovaj tip odziva odgovara Debyeovom ili relaksacijskom odzivu [8], no napominjemo da je χ_0 negativan, iz čega proizlazi da je $\varepsilon_r = 1 + \chi_r < 1$. Sustav ima relaksacijski odziv karakteriziran negativnim električnim kapacitetom koji se smanjuje s frekvencijom, popraćen dielektričnim gubitkom koji se javlja na konačnim frekvencijama.

5.3 Numeričko nelinearno rješenje

U ovom poglavlju razmatramo numeričko rješenje sustava (5.8), uključujući nelinearne članove. Sustav je riješen numerički u programskom jeziku *Mathematica*. Ovdje uzimamo niz vrijednosti $V_{g0} = 1V, 2V, 5V, 8V$ koje pokrivaju područje negativnog kapaciteta $P(E)$ karakteristike, kao na slici 5.2, te dodatno $V_{g0} = 14V$. Nećemo formulirati više redove susceptibilnosti, već ćemo računati $P(\Omega)$ i $E(\Omega)$ na svakoj pojedinoj frekvenciji Ω te gledati omjer njihovih amplituda i fazni pomak između njih. S obzirom na to da se jednačba mora riješiti na svakoj pojedinoj frekvenciji Ω , javlja se potreba za automatizacijom procesa računanja. Taj proces je ostvaren uz pomoć algoritma kojeg ćemo opisati.

Algoritam prvo radi datotečni sustav sastavljen od datoteka u koje su pohranjeni rezultati za pojedini korak frekvencije Ω , konačni kulminirani i obrađeni rezultati i svi relevantni „plotovi” (primjer, sl. 5.6), „plotovi” polarizacije u ovisnosti o vremenu za pojedinu frekvenciju, „plotovi” dobivenog električnog polja u ovisnosti o vremenu za pojedinu frekvenciju, „plotovi” s polarizacijom i električnim poljem te, konačno, tekstualna datoteka s korištenim parametrima. Datotečni sustav omogućuje pregled cijelog procesa i daje uvid u probleme koji se javljaju kroz izvođenje algoritma. Nakon postavljanja datotečnog sustava, inicijaliziraju se osnovni parametri i funkcije. Izrezak (Kod 1) inicijalizira osnovne parametre potrebne za rješavanje sustava (5.8).

Kod 1: Inicijalizacija parametara Landau-Khalatnikove jednačbe

```
 $\alpha$  = -2 10^7;  
a = - $\alpha$ ;  
 $\beta$  = -35.6 10^8;  
 $\gamma$  = 27 10^10;  
 $\rho$  = 1.4 10^-3;  
 $\epsilon_0$  = 8.854187817 10^-12;  
 $\epsilon_{A1203}$  = 9.1;  
dFE = N [55 10^-9];  
dDE = N [7 10^-9];  
Vg0 = 1.0;  
A0 = ( $\epsilon_0$   $\epsilon_{A1203}$ )/dDE Vg0;  
B =  $\epsilon_0$  ( 1 +  $\epsilon_{A1203}$  dFE/dDE)
```

Nadalje, izrezak (Kod 2) inicijalizira parametre potrebne za automatizaciju i obradu podataka. Navedeni parametri će dati 54 para polarizacije i frekvencije, s korakom od 3×10^9 Hz. Rezultat će se dobiti iz vremenskog uzorka u stacionarnom režimu ($T_{min} \gg \tau$). Ovdje se još nalazi početni uvjet amplitude polarizacije P_0 .

Kod 2: Postav frekventnog raspona i koraka, početni uvjeti za rješavanje sustava

```

Ωmin = 500;
Ωmax = 1.6 10^11 + 3;

Ωstep = 3 10^9;
n = N[(Ωmax - Ωmin)/Ωstep]

Tmin = (15 ρ)/Abs[ 1/B - a]
Tmax = 0.1;
P0 = 10;

```

Nakon inicijalizacije parametara, preostaje samo inicijalizirati funkcije koje predstavljaju naš sustav jednadžbi (Kod 3). Posebnost je u funkcijama $A[t_]$ i $Fp[t_]$ to što se u njima nalazi parametar Ω koji je trenutno nedefiniran. Funkcija $Fp[t_]$ se dalje prosljeđuje u ugrađenu funkciju $ParametricNDSolve[...]$ (Kod 4) i ona pronalazi numeričko rješenje obične diferencijalne jednadžbe. Uzima Landau-Khalatnikovu jednadžbu, početni uvjet polarizacije P_0 , simbol P za koji se rješava sustav, neovisnu varijablu t i raspon po kojem će se riješiti sustav te simbol Ω . $ParametricNDSolve[...]$ dat će objekt $ParametricFunction P\Omega t$. Rješenje sustava ćemo dobiti tek kad se objekt izvrijedni za parametar označen simbolom Ω [22].

Kod 3: Sustav jednažbi

```
A[t_] := A0 Cos[Ω t]

Fe[Ω_, t_] := 1/B (A0 Cos[Ω t] - P[Ω][t]);
Fp[t_] := (1/B - a) P[t] + β P[t]^3 + γ P[t]^5 - A[t]/B;
```

Kod 4: Numeričko parametarsko rješenje

```
PΩt = ParametricNDSolve[
  {ρ P'[t] + Fp[t] == 0,
   P[0] == P0
  },
  P,
  {t, 0, Tmax},
  {Ω}];
```

Algoritam dalje izvršava dvije *for* petlje, od kojih prva uz pomoć funkcija opisanih u izrescima (Kod 6, 7, 8) računa amplitude P_0 i E_0 te fazni pomak $\Delta\phi(\Omega)$, dok druga računa omjer dobivenih amplituda. Kod svih navedenih funkcija javlja se problem uzorkovanja, jer se povećanjem frekvencije zgušnjava signal $P(t)$ u rasponu $t \in [0, Tmax]$, što će uzrokovati pogrešku pri izvrjednjavanju $P\Omega t$ ili dati pogrešni rezultat (divergenciju). U tom vidu, napisan je izrezak koda (5) koji smanjuje gornju vremensku granicu $Tmax$ na $TSeen$ ovisno o frekvenciji. Uzima se gornja vremenska granica $Tmax$ i smanjuje se za bezdimenzionalni faktor određen frekvencijom $200/\Omega$. Ako je ukupan rezultat $Middle$ veći od $Tmin$, uzimamo taj rezultat kao novu gornju granicu. To će dati rezultat polarizacije i električnog polja na intervalu od tri valne duljine na nižim frekvencijama. Drugi slučaj, na višim frekvencijama, je manje korišten. $Middle$ je onda manji od $Tmin$, što znači da ne može služiti kao gornja granica. Zato se kao gornja granica stavlja odstupanje od $Tmin$ za $Tmax$ modificiran za faktor C/Ω (u našem slučaju $C = 5$). Ukupan učinak ove funkcije je jednoliko uzorkovanje rješenja na intervalu od otprilike tri valne duljine.

Kod 5: Odabir "cut-off" vremena uzorka

```
TSeen[Ω_] :=  
Module [  
  {Middle, Result},  
  
  Middle = (200 Tmax)/(Ω + $MachineEpsilon);  
  
  If[Middle > Tmin,  
    Result = Middle;  
  ];  
  
  If[Middle < Tmin,  
    Result = (Tmin + (5 Tmax)/Ω);  
  ];  
  
  If[Ω == Ωmin,  
    Result = Tmax  
  ];  
  
  Result  
]
```

Amplituda polarizacije (Kod 6) računa se za $P(t)$, dobiven izvrjednjavanjem $P\Omega t$ na frekvenciji Ω , pronalaskom lokalnih minimuma i maksimuma u stacionarnom režimu. Amplituda električnog polja računa se na sličan način (Kod 7). Funkcija prima $P\Omega t$ (*Solution*) koja se izvrjednjuje za Ω u $Fe[\Omega, t]$. Postupak je ekvivalentan uvrštavanju rješenja $P(t)$ u $Fe[\Omega, t]$, te pronalasku lokalnog minimuma i maksimuma za $E(t)$.

Kod 6: Računanje amplitude polarizacije

```

AmplitudeOfPt [P_, Ω_] :=
Module [
  {A, B, Result, MaxP, MinP},
  MaxP = {};
  MinP = {};
  Result = {};
  A = NMaximize[{P[t], Tmin < t < TSeen[Ω]}, t];
  B = NMinimize[{P[t], Tmin < t < TSeen[Ω]}, t];

  AppendTo[MaxP, t /. A[[2]]];
  AppendTo[MaxP, A[[1]]];

  AppendTo[MinP, t /. B[[2]]];
  AppendTo[MinP, B[[1]]];

  AppendTo[Result, Abs[(A[[1]] - B[[1]])/2]];
  AppendTo[Result, MaxP];
  AppendTo[Result, MinP];
  Result
]

```

Kod 7: Računanje amplitude električnog polja

```
AmplitudeOfEt[Solution_,  $\Omega$ ] :=  
Module [  
  {A, B, Result, MaxE, MinE},  
  MaxE = {};  
  MinE = {};  
  Result = {};  
  A = NMaximize[{Fe[ $\Omega$ , t] /. Solution, Tmin < t < TSeen[ $\Omega$ ]}, t];  
  B = NMinimize[{Fe[ $\Omega$ , t] /. Solution, Tmin < t < TSeen[ $\Omega$ ]}, t];  
  
  AppendTo[MaxE, t /. A[[2]]];  
  AppendTo[MaxE, A[[1]]];  
  
  AppendTo[MinE, t /. B[[2]]];  
  AppendTo[MinE, B[[1]]];  
  
  AppendTo[Result, Abs[(A[[1]] - B[[1]])/2]];  
  AppendTo[Result, MaxE];  
  AppendTo[Result, MinE];  
  Result  
]
```

Kod 8: Računanje razlike u fazi

```

PhaseDifference[Pt_, Solution_,  $\Omega$ _, i_] :=
Module[
  { $\Delta\Phi$ , Result, Pass, Upper, Step, FeP,
    PFourier, FFourier, MaxWP, PosWP},

  Upper = TSeen[ $\Omega$ ];
  Step = (Upper - Tmin)/30;
  FeP[t_] := Fe[ $\Omega$ , t] /. Solution;
  PFourier = Fourier[
    Table[Pt[t], {t, Tmin, Upper, Step}],
    FourierParameters -> {-1, 1}];
  FFourier = Fourier[
    Table[FeP[t], {t, Tmin, Upper, Step}],
    FourierParameters -> {-1, 1}];
  MaxWP = Max[Abs[PFourier]];
  PosWP = First[First[Position[Abs[PFourier], MaxWP]]];
   $\Delta\Phi$  = Arg[PFourier[[PosWP]]] - Arg[FFourier[[PosWP]]];

  If[-2  $\pi$   $\leq$   $\Delta\Phi$  <  $\pi$ ,
     $\Delta\Phi$  = - $\Delta\Phi$  - 2  $\pi$ 
  ];

  If[0 <  $\Delta\Phi$   $\leq$   $\pi$ ,
     $\Delta\Phi$  = - $\Delta\Phi$ ];

  If[ $\pi$  <  $\Delta\Phi$   $\leq$  2  $\pi$ ,
     $\Delta\Phi$  =  $\Delta\Phi$  - 2  $\pi$ 
  ];

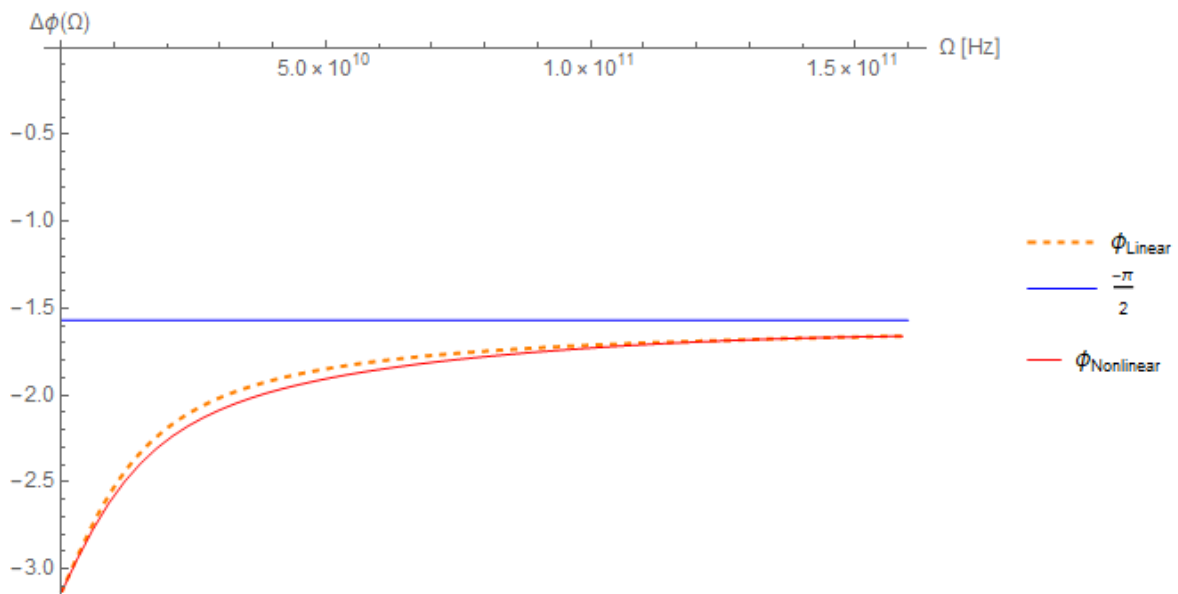
   $\Delta\Phi$ 

];

```

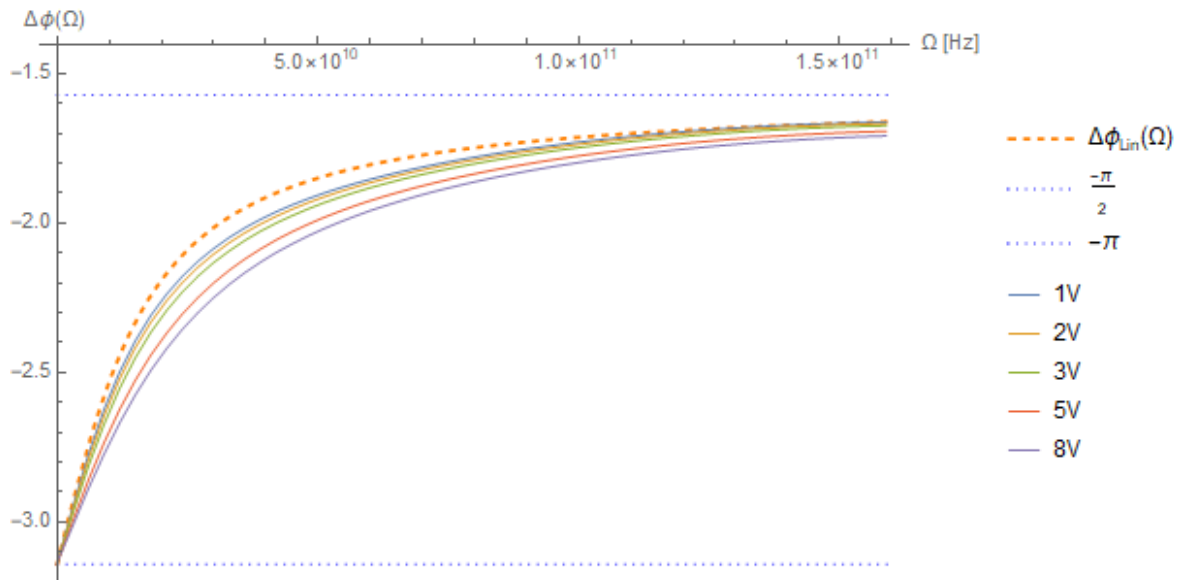
Na kraju, računa se fazni pomak između $E(t)$ i $P(t)$. Ugrađena funkcija $Fourier[...]$ pronalazi diskretnu Fourierovu transformaciju iz liste kompleksnih brojeva na uzorku od 30 jednako raspoređenih točaka [22,23]. Informacija o predznaku faze se gubi kod pronalaska apsolutne vrijednosti maksimuma u $MaxWP$, te se mora zrcaliti da bi se pronašla prava faza i/ili translirati za $+2\pi$ ili -2π . Pomaci od $\pm 2\pi$ su posljedica same ugrađene funkcije $Fourier[...]$ [23].

Primjer konačnog rezultata nakon što se izvrši druga petlja prikazan je na slici 5.7.

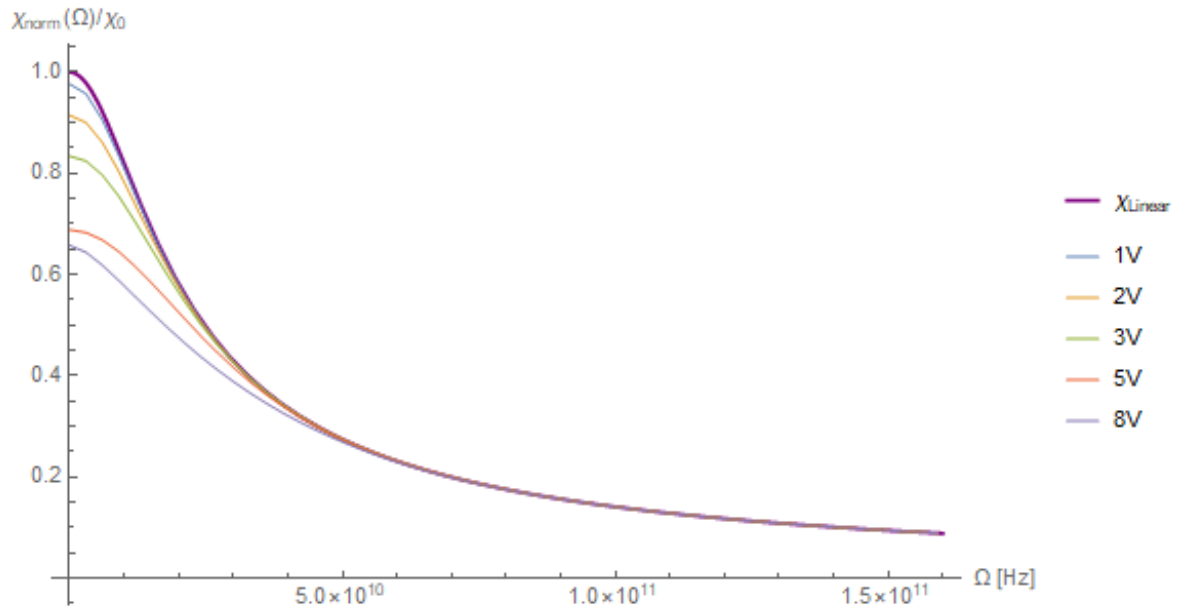


Slika 5.7: Primjer rješenja algoritma za fazni pomak. Vidljivo je manje odstupanje nelinearnog faznog pomaka (puna linija) od analitički dobivenog faznog pomaka (isprekidana linija).

Kumulirani rezultati simulacije na slici 5.8 pokazuju da su devijacije od linearnog modela najizraženije na malim frekvencijama u odnosu na karakterističnu frekventnu skalu τ^{-1} , dok na višim frekvencijama rezultat nelinearnog modela saturira prema rezultatu linearnog modela. Također je vidljivo da za više vrijednosti V_{g0} amplituda odziva opada, dok se fazni pomak sporije mijenja prema $-\pi/2$. Nelinearni model ne daje nikakve fundamentalne razlike u ponašanju frekventnog odziva, već samo manju korekciju amplitude kompleksne susceptibilnosti, do najviše 30% na niskim frekvencijama. Napominjemo da algoritam ne daje dobar rezultat faznog pomaka i amplitude za napone veće od $V_g > 8.5V$ radi izraženijih nelinearnih utjecaja koji se nalaze na području pozitivnog kapaciteta (slika 5.9).

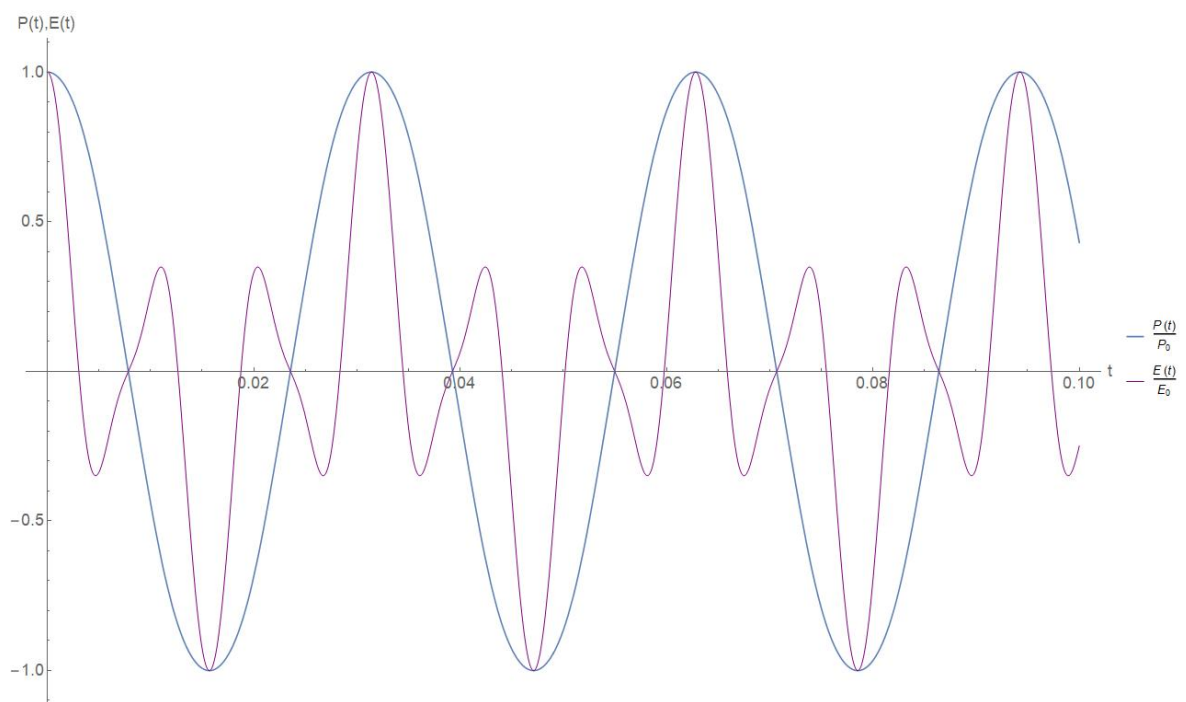


(a) razlike u fazi nelinearnog modela uspoređene s linearnim modelom



(b) susceptibilnost u ovisnosti o frekvenciji normirana na χ_0

Slika 5.8: Kumulirani rezultati simulacije za dielektrični odziv i razlike u fazi za niz napona $V_{g0} = 1V, 2V, 5V, 8V$. Na nižim frekvencijama, devijacije nelinearnog modela od linearnog su najizraženije.



Slika 5.9: Usporedba polarizacije $P(t)$ i električnog polja $E(t)$ za $V_{g0} = 14$ V na frekvenciji $\Omega = 200$ Hz.

6 Zaključak

Opisali smo pojavu feroelektričnosti i osnovne mehanizme koji joj pripadaju. Landauova teorija se pokazala kao dobar pristup da se opišu svojstva i mehanizmi feroelektričnosti. Njome smo uspješno opisali fazne prijelaze u feroelektricima, kao i Curie-Weissovo temperaturno ponašanje opaženo u feroelektricima. Landauova teorija daje statički opis za fazne prijelaze. Dinamički opis dali smo u okviru Landau-Khalatnikove jednadžbe. Uzeli smo spoj feroelektrika i dielektrika prema Tsividisovom modelu i iz rubnih uvjeta određenih Maxwellovim jednadžbama došli do uvjeta stabilnosti za negativni električni kapacitet. Pomoću uvjeta smo postavili sustav jednadžbi gibanja za polarizaciju koji smo riješili analitički i numerički dobivši da je susceptibilnost negativna. Analitički rezultat dao je glavno frekventno ponašanje susceptibilnosti koje odgovara Debyeovom ili relaksacijskom odzivu [7, 8] na karakterističnoj skali reda 10 GHz. Numerički rezultat pokazuje da postoji manje odstupanje od linearnog modela, do najviše 30%.

7 Metodička priprema

U ovom poglavlju, predstavljamo pripremu za jedan sat fizike predviđen za 3. razred gimnazije. Tema nastavne jedinice je električni kapacitet, u trajanju od ≈ 45 min. Vrsta nastave je interaktivna, istraživački usmjerena nastava, koja pokazuje najbolje rezultate što se tiče usvojenog gradiva. Kako bismo to postigli, koristili smo se nastavnim metodama koje uključuju:

- demonstraciju pokusa
- metodu razgovora - usmjerena rasprava
- kooperativno rješavanje zadataka u skupinama
- metodu pisanja/crtanja

Nastavna jedinica korelirana je s matematikom u smislu prepoznavanja proporcionalnosti i linearnosti, te se uvelike oslanja na prethodno usvojena znanja s područja elektrostatike.

Obrazovni i odgojni ishodi, nastavna pomagala i sredstva

Temeljeno na [24], [25] i [26], uzima se u obzir da su učenici prethodno usvojili mjerenje napona elektroskopom, pojmove napona i električnog potencijala.

Obrazovni ishodi:

- prisjetiti se pojmova električnog potencijala i napona
- prisjetiti se mjerenja napona elektroskopom
- povezati napon i naboj tijela s električnim kapacitetom
- zapamtiti definiciju električnog kapaciteta
- izvesti izraz za električni kapacitet
- zapamtiti strukturu pločastog kondenzatora
- izvesti izraz za kapacitet pločastog kondenzatora
- opisati učinak dielektričnog sredstva na kapacitet pločastog kondenzatora

- zapamtiti pojam relativne permitivnosti dielektrika
- zapamtiti jedinicu za električni kapacitet, farad
- izračunati površinu pločastog kondenzatora za zadani kapacitet

Odgojni ishodi:

- razvijati stvaralačko mišljenje
- razvijati sposobnost kritičkog mišljenja
- razvijati vještinu iskazivanja pretpostavke i rješavanja problema
- razvijati sposobnost znanstvenog načina razmišljanja

Izvode se dva pokusa, jedan s dvije kugle različitog promjera, a drugi s pločastim kondenzatorom. Za pokus s dvije kugle potrebna su dva elektroskopa jednake osjetljivosti (potrebno baždariti nitrolakom, ako već nisu), dvije metalne kugle različita promjera, kušalica za prebacivanje naboja, nosač i dodatna kugla koja će služiti kao bazen naboja, krpa i štapić. Za pokus s pločastim kondenzatorom potreban je elektroskop, dvije jednake ploče, nosač i stezaljka te kabel.

Dodatno će se profesor koristiti pločom i kredama u boji, ravnalom, trokutom, laptopom i projektorom za prezentaciju.

Tijek nastavnog sata

Nastavni sat se sastoji od tri dijela: uvodnog, središnjeg i završnog. U uvodnom dijelu, predstavlja se osnovni problem kapaciteta te se pomoću znanstvenog pristupa prikupljaju ideje. Također, upoznaje se i modelira pojava kapaciteta. U uvodnom dijelu, ponovit će se prethodno znanje napona, električnog potencijala i mjerenja istih pomoću elektroskopa. U središnjem dijelu razvijamo model na pločastom kondenzatoru i pomoću kontrole varijabli izvodimo izraz za kapacitet pločastog kondenzatora. Također, promatramo utjecaj dielektričnog materijala na kapacitet pločastog kondenzatora. U završnom dijelu se primjenjuju modeli u zadatku te se uvodi jedinica za kapacitet, farad.

Podrazumijeva se da **podebljan** tekst označava postavljanje pitanja i predavački sadržaj od profesora, *ukošen* tekst predstavlja odgovore učenika, dok običan tekst služi za komentare, bilješke, i ostalo. Učenički odgovori smatraju se idealnima, no u stvarnosti se ne trebaju pojaviti odmah, već je često potrebno još potpitanja da se dođe do ispravnog zaključka. Dodatno, neka očekivana potpitanja nalaze se u zagradama.

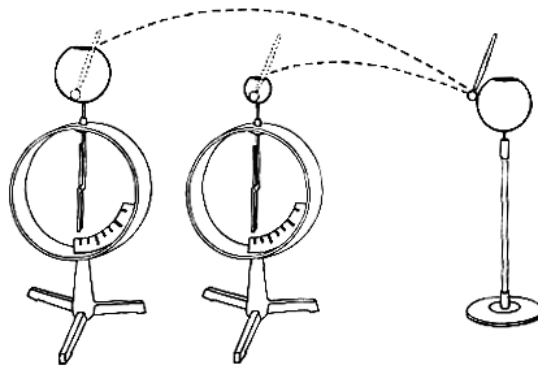
Uvodni dio - trajanje 15 – 20 min

Ishodi:

- prisjetiti se pojmova električnog potencijala i napona
- prisjetiti se mjerenja napona elektroskopom
- povezati napon i naboj tijela s električnim kapacitetom
- zapamtiti definiciju električnog kapaciteta
- izvesti izraz za električni kapacitet

Postav pokusa s dvije kugle pripremljen je na stolu (7.1).

Ponovimo. Kako se zove ova sprava i za što smo je koristili? Što je to napon? Između čega mjerimo razliku potencijala? Koliki je potencijal kućišta?



Slika 7.1: Postav pokusa s dva elektroskopa za električni kapacitet. Slika preuzeta iz [24]

Sprava na stolu je elektroskop i koristi se za mjerenje napona. Napon je razlika električnog potencijala, a elektroskop mjeri razliku potencijala između kućišta i kugle (i kazaljki). Kućište je uzemljeno, a potencijal kućišta je 0 V.

Pred nama su dva elektroskopa iste osjetljivosti (demonstrirati) s različitim kuglama. S naelektrizirane kugle ću kušalicom prenijeti naboj na veću kuglu, izbit ću kušalicu, ponovno je nabiti i naboj prenijeti na manju kuglu. Koliko ću naboja prenijeti na malu kuglu, a koliko na veliku? (Kako će se raspodijeliti naboj između kušalice i nabijene kugle?) Koja su naša predviđanja - kakvi će biti otkloni kazaljki? Zašto?

Kušalicom ćete prenijeti jednake količine naboja na obje kugle.

(pogrešno) - Otkloni kazaljki će biti jednaki, jer je isti naboj na obje kugle.

(točno) - Otklon kazaljke na većoj kugli bit će manji, jer je raspodjela naboja rjeđa na toj kugli.

Izvršen je pokus. Što vidite? Što pokazuje elektroskop? Koji elektroskop ima veći otklon? Koji elektroskop ima veći napon? Što moramo napraviti da bi naponi na oba elektroskopa bili jednaki?

Otkloni kazaljki su različiti. Napon na manjoj kugli je veći od napona na većoj, jer ima veći otklon. Da bismo izjednačili napone, moramo dodati još naboja na veću kuglu.

Dovodimo još naboja na veću kuglu, tako da su otkloni približno jednaki. Koja kugla ima više naboja? Što bi se dogodilo da dovedemo još naboja na manju kuglu? Možemo li dovoditi koliko god hoćemo naboja na manju kuglu? Koja kugla, prema tome, može primiti više naboja?

Veća kugla je primila više naboja. Dovodjenjem naboja na manju kuglu povećat će se otklon kazaljke, no nakon određene količine, kugla više neće primiti naboj. Veća kugla može primiti više naboja.

Po potrebi izvesti pokus još jednom (dovoditi naboj na veću i na manju kuglu).

Zapišite. Definicija. Fizikalna veličina koja opisuje koliko električnog naboja tijelo može primiti uz povećanje električnog napona zove se električni kapacitet i označavamo ga s C . Ostavite si mjesta za formulu.

Koja kugla ima veći električni kapacitet? Kako kapacitet ovisi o naboju q ? Kako kapacitet ovisi o naponu U ? (Koja kugla ima veći kapacitet? Elektroskop koje kugle ima veći otklon?) Po potrebi opet dovoditi naboj na svaku kuglu.

Kapacitet je proporcionalan naboju $C \sim q$. Kapacitet je obrnuto proporcionalan naponu $C \sim 1/U$.

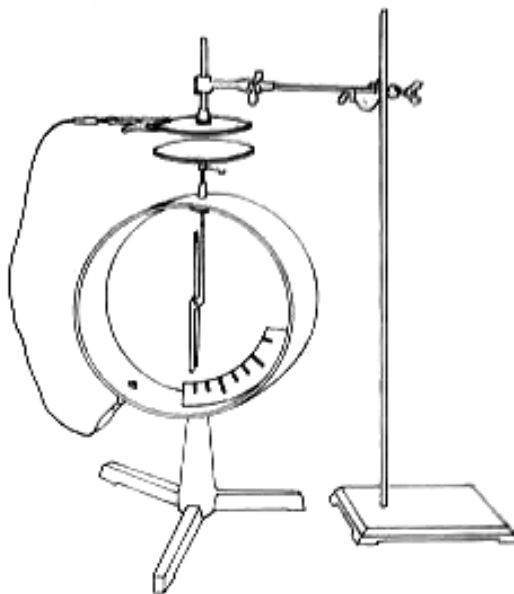
Kako onda glasi izraz za električni kapacitet?

$$C = \frac{q}{U}$$

Središnji dio - trajanje 20 – 25 min

Ishodi:

- zapamtiti strukturu pločastog kondenzatora
- izvesti izraz za kapacitet pločastog kondenzatora
- opisati učinak dielektričnog sredstva na kapacitet pločastog kondenzatora
- zapamtiti pojam relativne permitivnosti dielektrika



Slika 7.2: Postav pokusa s pločastim kondenzatorom. Slika preuzeta iz [24]

Priprema se postav pokusa za pločasti kondenzator (7.2). Uzimamo dvije ploče i jednu stavljamo na elektroskop, a drugu na stalak s držačem. Ploče se namjeste tako da je razmak između njih oko 2 cm te je gornja ploča uzemljena na kućištu elektroskopa.

Pred vama je uređaj sastavljen od dvije ploče, zvan pločasti kondenzator. Zapišite. Kondenzator je naprava u koju je moguće pohraniti električni naboj, a sastoji se od dva međusobno izolirana vodiča. Dakle, prema definiciji, od čega se sastoji ovaj pločasti kondenzator?

Od dvije ploče.

Na donju ploču ću dovesti naboj. Kakav će biti naboj na gornjoj ploči, ako na donju dovedemo pozitivan? Kakav će biti napon između dvije ploče? Koju razliku potencijala ćemo gledati? (Kakav potencijal ima gornja ploča? Kako možemo očitati potencijal donje ploče?)

Na gornjoj ploči će se inducirati negativan naboj. Napon naprave ćemo mjeriti elektroskopom, i to kao razliku potencijala između dvije ploče. (Gornja ploča je uzemljena, ima potencijal 0 V. Potencijal donje ploče ćemo očitati s elektroskopa.)

Promotrite što će se dogoditi s naponom ako razmaknemo površine ploča. Što se dogodilo? Kakav je kapacitet kondenzatora? Što će se dogoditi ako potpuno razmaknemo ploče? Što će se dogoditi ako ponovno preklapimo ploče?

Kazaljka se jače otklonila, što znači da se kapacitet kondenzatora smanjio. Ako potpuno razmaknemo ploče, kapacitet bi se još smanjio, a otklon kazaljke bi se povećao. Kad vratite ploče, onda će se i otklon kazaljke smanjiti, a kapacitet povećati.

Što zaključujete, o čemu ovisi kapacitet pločastog kondenzatora? U kakvom su odnosu površina preklapanja i kapacitet?

Kapacitet pločastog kondenzatora ovisi o površini preklapanja ploča. Kapacitet je proporcionalan s površinom $C \sim S$.

Moguće je da isprva neće biti jasno kako je preklapanje površina ploča povezano s kapacitetom. U tom slučaju treba pomoći s crtežom i potpitanjima.

Vratimo ploče na svoje mjesto tako da se potpuno preklapaju. Kakvo je električno polje između dvije ploče? Mijenja li se jačina električnog polja udaljavanjem ploča? Kako će se promijeniti napon udaljavanjem ploča? (Prisjetimo se izraza za napon, kako glasi?) Kako će se promijeniti kapacitet udaljavanjem ploča?

Električno polje između dvije ploče je jednoliko. Povećanjem udaljenosti ne mijenja se električno polje. Iz izraza za napon $U = Ed$ možemo zaključiti da će se napon povećati. Prema tome, kapacitet će se smanjiti.

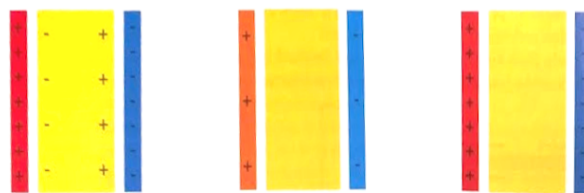
Što zaključujete, u kakvom su odnosu kapacitet pločastog kondenzatora i udaljenost između ploča? (Smanjuje li se kapacitet povećanjem udaljenosti ili pak se povećava?)

Kapacitet je obrnuto proporcionalan udaljenosti između ploča $C \sim 1/d$.

Spajanjem proporcionalnosti dolazimo do zaključka da je kapacitet pločastog kondenzatora proporcionalan površini ploča i obrnuto proporcionalan njihovoj međusobnoj udaljenosti $C \sim \frac{S}{d}$.

Sad ću staviti jednu pločicu izolatora (pr. pleksiglas) između ploča. Kako će se promijeniti napon? Kako će se promijeniti kapacitet? Zašto? (Pitanja za napredniji razred. Ne očekuje se točan odgovor, no postoji predznanje koje bi ipak moglo dovesti do točnog zaključka.)

(pogrešno, pogađanje) - Napon će se povećati. Kapacitet će se smanjiti, jer smo time izolirali površine.



Slika 7.3: Crtež dielektrika između nabijenih ploča kondenzatora. Polarizacijom dielektrika naboj ploča se djelomično neutralizira (lijevo, sredina). Priključivanjem napona na ploče javlja se novi naboj jednak neutraliziranom (desno). Slika preuzeta iz [25]

Što vidite? Što se dogodilo s naponom, kapacitetom? Kako se raspodijelio naboj u pločici (pomoći crtežom, slika (7.3))? Što će se stvoriti u pločici ako imamo ovakvu raspodjelu naboja? Kojeg će smjera biti električno polje u pločici u odnosu na električno polje između ploča kondenzatora? Koje je jačine elek-

trično polje u pleksiglasu? Što će se dogoditi s oba polja, kako će međudjelovati? Što će se dogoditi s ukupnim poljem kondenzatora? Zašto se napon onda smanjio (pogledajte izraz za napon)? Što se događa s kapacitetom?

Napon se smanjio, a kapacitet se povećao. Pozitivan naboj će se inducirati kod negativno nabijene ploče, a negativan kod pozitivno nabijene. Unutar pleksiglasa se stvara električno polje koje ima suprotan smjer od onoga između ploča. Polje u pleksiglasu je slabije nego ono između ploča. Polja će se zbrojiti i ukupno polje u kondenzatoru će se smanjiti. Zato će se napon smanjiti, odnosno kapacitet povećati.

U električnom polju dielektrični materijal postaje polariziran. Dio polariziranog naboja efektivno neutralizira naboj na pločama kondenzatora, te na ploče može doći još naboja za isti napon [25].

Pokus se nastavlja stavljanjem raznih materijala između ploča kondenzatora.

U redu, što će se dogoditi ako među ploče stavim dielektrik-2? Dielektrik-3? Dielektrik-4? Jesu li kapaciteti veći s ili bez dielektrika? Što onda zaključujemo, o čemu sve ovisi kapacitet pločastog kondenzatora?

Kapacitet će se povećati. Kapacitet je veći s dielektrikom između ploča. Kapacitet pločastog kondenzatora je proporcionalan površini preklapanja, obrnuto proporcionalan udaljenosti među pločama, i ovisi o materijalu između ploča.

Veličina koja pokazuje koliko će se povećati kapacitet naziva se relativna permisivnost ϵ_r . Dakle, zaključili smo da je kapacitet pločastog kondenzatora $C \sim \frac{S}{d}\epsilon_r$. Zapišite da je kapacitet pločastog kondenzatora $C = \epsilon_0\epsilon_r\frac{S}{d}$. U zraku je $\epsilon_r = 1$, iz čega slijedi da je kapacitet pločastog kondenzatora u zraku $C = \epsilon_0\frac{S}{d}$.

Završni dio - trajanje 5 – 10 min

Ishodi:

- zapamtiti jedinicu za električni kapacitet, farad
- izračunati površinu pločastog kondenzatora za zadani kapacitet

Jedinica za kapacitet kondenzatora je $1\text{ F} = 1 \frac{\text{C}}{\text{V}}$ (farad). Farad je zaista velika jedinica, pa se u praksi upotrebljavaju manje decimalne jedinice, poput $1\mu\text{F}$, 1 nF , 1 pF . Kako bismo se uvjerali da je to velika jedinica, idemo izračunati koliko je površina ploča kondenzatora potrebna da se ostvari kapacitet od jednog farada. Zadatak riješite u paru.

Zadatak. Izračunaj površinu S ploča kondenzatora da bi se ostvario kapacitet od 1 F , pod pretpostavkom da su ploče udaljene 2mm .

$$C = 1\text{ F}$$

$$d = 2\text{mm}$$

$$\varepsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12}\text{ Fm}^{-1}$$

$$S = \frac{Cd}{\varepsilon_0}$$

$$S = \frac{1\text{ F} \cdot 2\text{mm}}{8.854 \times 10^{-12}\text{ Fm}^{-1}} = 2.2 \times 10^8\text{ m}^2$$

$$S = 10\text{km} \times 22\text{km}$$

Literatura

- [1] John Dulac, Thibaut Abergel, and Chiara Delmastro. Data centres and data transmission networks. URL: <https://www.iea.org/reports/tracking-buildings/data-centres-and-data-transmission-networks>.
- [2] Asif Islam Khan. *Negative Capacitance for Ultra-low Power Computing*. PhD thesis, EECS Department, University of California, Berkeley, Jul 2015. URL: <http://www2.eecs.berkeley.edu/Pubs/TechRpts/2015/EECS-2015-171.html>.
- [3] J.-P. Colinge and C.A. Colinge. *Physics of Semiconductor Devices*, pages 201–205. Springer US, 2002. doi:10.1007/b117561.
- [4] Sayeef Salahuddin and Supriyo Datta. Use of negative capacitance to provide voltage amplification for low power nanoscale devices. *Nano Letters*, 8(2):405–410, 2008. PMID: 18052402. arXiv:0707.2073, doi:10.1021/nl071804g.
- [5] Alexandru Rusu, Ali Saeidi, and Adrian M Ionescu. Condition for the negative capacitance effect in metal–ferroelectric–insulator–semiconductor devices. *Nanotechnology*, 27(11):115–201, feb 2016. URL: <https://doi.org/10.1088/2F0957-4484/27/11/115201>, doi:10.1088/0957-4484/27/11/115201.
- [6] David J. Griffiths. *Introduction to Electrodynamics*. Cambridge University Press, 3rd edition, 1999.
- [7] M. A. Omar. *Elementary Solid State Physics: Principles And Applications*. Addison-Wesley Publishing Company, 1993.
- [8] Leonard Dissado. Dielectric response. In Kasap S. and Capper P., editors, *Springer Handbook of Electronic and Photonic Materials*, chapter 10, pages 219–245. Springer Handbooks, Springer, Cham, 2017. doi:10.1007/978-3-319-48933-9_10.
- [9] Hugh D. Young and Roger A. Freedman. *Sears and Zeamnskys’s University physics with modern physics*. Pearson Addison-Wesley, 13th edition, 2012.
- [10] Charles Kittel. *Introduction to Solid State Physics*, pages 453–485. John Wiley & Sons, Inc., 8th edition, 2005.

- [11] Boris A. Strukov and Arkadi P. Levanyuk. *Ferroelectric Phenomena in Crystals*, page 19. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1st edition, 1998.
- [12] Peter D. Olmsted. Lectures on Landau theory of phase transitions. URL: http://site.physics.georgetown.edu/~pdo7/ps_files/landau.pdf.
- [13] Pierre Papon, Jacques Leblond, and Paul H.E. Meijer. *The Physics of Phase Transitions - Concepts and Applications: Pierre Papon*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2nd edition, 2006. URL: <https://www.springer.com/gp/book/9783540333890>.
- [14] Premi Chandra and Peter Littlewood. *A Landau Primer for Ferroelectrics*, volume 105, pages 69–116. 07 2007. arXiv:cond-mat/0609347, doi:10.1007/978-3-540-34591-6_3.
- [15] Vladimir Fridkin and Stephen Ducharme. *Ferroelectricity and Ferroelectric Phase Transition*, pages 1–9. 01 2014. doi:10.1007/978-3-642-41007-9_1.
- [16] S. Gevorgian, A. Tagantsev, and A.K. Vorobiev. *Tuneable Film Bulk Acoustic Wave Resonators*, pages 17–54. Springer-Verlag, 2013.
- [17] 82 - on the anomalous absorption of sound near a second order phase transition point. In D. TER HAAR, editor, *Collected Papers of L.D. Landau*, pages 626 – 629. Pergamon, 1965. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780080105864500870>, doi:<https://doi.org/10.1016/B978-0-08-010586-4.50087-0>.
- [18] Tae Kwon Song. Landau-khalatnikov simulations for ferroelectric switching in ferroelectric random access memory application. *Journal of the Korean Physical Society*, 46:5–9, 01 2005.
- [19] S. Sivasubramanian, A. Widom, and Y. N. Srivastava. Physical kinetics of ferroelectric hysteresis. *Ferroelectrics*, 300(1):43–55, 2004. arXiv:<https://doi.org/10.1080/00150190490442173>, doi:10.1080/00150190490442173.
- [20] A. Cano and D. Jiménez. Multidomain ferroelectricity as a limiting factor for voltage amplification in ferroelectric field-effect transistors. *Applied Physics Letters*, 97(13):133509, 2010. arXiv:<https://doi.org/10.1063/1.3494533>, doi:10.1063/1.3494533.

- [21] D. Radić. Diferencijalne jednačbe i dinamički sustavi, nastavna skripta, 2014.
- [22] Wolfram language & system - documentation center. URL: <https://reference.wolfram.com/language/>.
- [23] A. Dieckmann. Amplitude and phase of a discrete fourier spectrum, 2014. URL: <http://www-elsa.physik.uni-bonn.de/~dieckman/DFT/DFT.html>.
- [24] R. Krsnik and B. Mikulčić. *Medudjelovanja, relativnost titranja i zvuk, priručnik za nastavu u trećem razredu gimnazije*. Školska knjiga, d.d., Zagreb, 3 edition, 1996.
- [25] Jakov Labor. *Fizika 2 - udžbenik za 2. razred gimnazije*. Alfa, Zagreb, 2014.
- [26] Odluka o donošenju kurikuluma za nastavni predmet fizike za osnovne škole i gimnazije u republici hrvatskoj, 2019. URL: https://narodne-novine.nn.hr/clanci/sluzbeni/2019_01_10_210.html.