

В. Ф. Кондрат, О. Р. Грицина

До опису аномалії Міда у тонких діелектричних плівках

(Представлено членом-кореспондентом НАН України Я. Й. Бураком)

Показано, що запропонована раніше модель електромагнетотермомеханічних процесів у діелектричних матеріалах, яка враховує локальне зміщення маси, адекватно описує аномальну залежність електричної ємності тонких діелектричних плівок від їх товщини та нелінійність розподілу в них електричних полів. Таку аномалію спостерігав С. А. Мід під час вимірювання ємності тонких діелектричних плівок. Отримані результати узгоджуються з результатами, одержаними раніше Р. Д. Міндліним на основі градієнтної теорії п'єзоелектриків.

Згідно з класичною теорією діелектриків, вектор поляризації у тонкому ізотропному діелектричному шарі, поміщеному поміж металічними електродами, є постійною величиною, а електричний потенціал у такому шарі є лінійною функцією товщинної координати [1–5]. Однак, як зауважив Міндлін [3–5], аналіз результатів експериментів, проведених Мідом [6, 7], свідчить, що для тонких діелектричних шарів характерні більші значення електроємності, ніж передбачає класична теорія, нелінійний розподіл потенціалу φ і поляризації p , а також наявність механічних напружень. Ця неузгодженість класичної теорії з експериментальними даними стала поштовхом для побудови нових узагальнених теорій. Для пояснення такої аномальної поведінки діелектриків Міндлін [3–5] використав так звану градієнтну теорію п'єзоелектриків, яка ґрунтується на лінійній теорії п'єзоелектриків Тупіна [8, 9] і додатково враховує вплив градієнта вектора поляризації на стан тіла. На цій основі для ізотропних тіл Міндлін отримав взаємозв'язану систему рівнянь електромеханіки, з використанням якої одержав результати, що узгоджувалися з дослідями Міда.

Нижче показано, що результати експерименту Міда описує також теорія електромагнетотермомеханіки поляризованих тіл, запропонована у роботах [10, 11], де враховано як процеси деформування, теплопровідності та електричної поляризації, так і процес локального зміщення маси. Наслідком цього є розширення простору параметрів стану, в який поряд із загальноприйнятими входять два нових параметри, а саме, приведена величина $\mu'_\pi = \mu_\pi - \mu$ (μ_π — міра зміни внутрішньої енергії системи, спричиненої локальним зміщенням маси [10, 11, 13], μ — хімічний потенціал) та питома векторна величина $\pi_m = \mathbf{\Pi}_m / \rho$ ($\mathbf{\Pi}_m$ — вектор локального зміщення маси [10–13]; ρ — густина маси тіла), спряженими до яких відповідно є питома густина наведеної маси $\rho_m = \rho_{m\pi} / \rho$ ($\rho_{m\pi}$ — густина наведеної маси [10, 11]) та просторовий градієнт $\nabla \mu'_\pi$ наведеної енергетичної міри μ'_π .

Повна система рівнянь моделі електромагнетотермомеханіки поляризованих неферомагнетних твердих тіл із врахуванням процесу локального зміщення маси [10, 11] включає рівняння руху

$$\rho \frac{d\mathbf{v}}{dt} = \nabla \cdot \hat{\sigma}_* + \mathbf{F}_e + \rho \mathbf{F}_*, \quad (1)$$

балансу ентропії та маси

$$\rho T \frac{ds}{dt} = -\nabla \cdot \mathbf{J}_q + \frac{1}{T} \mathbf{J}_q \cdot \nabla T + T \sigma_s + \rho \mathfrak{R}, \quad (2)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = 0, \quad (3)$$

рівняння Максвелла

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \quad \nabla \cdot \mathbf{D} = \rho_e, \quad \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad \nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J}_{ef}, \quad (4)$$

балансу наведеної маси та наведеного електричного заряду

$$\frac{\partial \rho_{e\pi}}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{J}_{es} = 0, \quad (5)$$

$$\frac{\partial \rho_{m\pi}}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{J}_{ms} = 0, \quad (6)$$

рівняння стану, які в лінеаризованому наближенні мають вигляд

$$\begin{aligned} s &= s_0 - [a_T^s(T - T_0) + \rho_0^{-1}a_{eT}e + a_{\rho T}\rho_m], \\ \hat{\sigma}_* &= 2a_2^\sigma \hat{e} + [a_1^\sigma e + a_{eT}(T - T_0) + a_{e\rho}\rho_m] \hat{\mathbf{I}}, \\ \mu'_\pi &= \mu'_{\pi 0} + a_\rho^\mu \rho_m + \rho_0^{-1}a_{e\rho}e + a_{\rho T}(T - T_0), \\ \mathbf{p} &= -a_E^p \mathbf{E}_* - a_{E\mu} \nabla \mu'_\pi, \\ \boldsymbol{\pi}_m &= a_\mu^\pi \nabla \mu'_\pi + a_{E\mu} \mathbf{E}_*, \end{aligned} \quad (7)$$

кінетичні співвідношення

$$\mathbf{J}_{e*} = \sigma_e \mathbf{E}_* + \sigma_e \eta \nabla T, \quad \mathbf{J}_q = -\lambda \nabla T + \pi_t \mathbf{J}_{e*} \quad (8)$$

та відповідні геометричні співвідношення.

Тут

$$\begin{aligned} \sigma_s &= \mathbf{J}_{e*} \cdot \frac{\mathbf{E}_*}{T} - \mathbf{J}_q \cdot \frac{\nabla T}{T^2}, \\ \mathbf{E}_* &= \mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}, \quad \mathbf{J}_{e*} = \mathbf{J}_e - \rho_e \mathbf{v}, \\ \hat{\sigma}_* &= \hat{\sigma} - \rho(\mathbf{E}_* \cdot \mathbf{p} - \rho_m \mu'_\pi - \boldsymbol{\pi}_m \cdot \nabla \mu'_\pi) \hat{\mathbf{I}}, \\ \mathbf{F}_* &= \mathbf{F} + \rho_m \nabla \mu'_\pi - \boldsymbol{\pi}_m \cdot \nabla \nabla \mu'_\pi, \\ \mathbf{F}_e &= \rho_e \mathbf{E}_* + \left(\mathbf{J}_{e*} + \frac{\partial(\rho \mathbf{p})}{\partial t} \right) \times \mathbf{B} + \rho(\nabla \mathbf{E}_*) \cdot \mathbf{p}, \end{aligned} \quad (9)$$

$\hat{\sigma}$ — тензор напружень Коші; \hat{e} , e — тензор деформації та його перший інваріант; ρ , ρ_0 — густина маси в актуальний та початковий моменти часу; \mathbf{E} , \mathbf{H} — вектори напруженостей електричного та магнітного полів; \mathbf{D} , \mathbf{B} — вектори індукції електричного та магнітного полів; для неферромагнітних тіл, які тут розглядаємо, $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$; $\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$, де \mathbf{P} — вектор поляризації (вектор локального зміщення електричного заряду); $\mathbf{p} = \mathbf{P}/\rho$ — питомий вектор поляризації; ε_0 , μ_0 — електрична й магнітна сталі; ρ_e , $\rho_{e\pi}$ — густини вільних та наведених (зв'язаних) електричних зарядів; $\mathbf{J}_{ef} = \mathbf{J}_e + \mathbf{J}_{ed} + \mathbf{J}_{es}$ — вектор густини повного

електричного струму; \mathbf{J}_e — вектор густини електричного струму (струм провідності й конвективна складова); $\mathbf{J}_{ed} = \varepsilon_0(\partial\mathbf{E}/\partial t)$; $\mathbf{J}_{es} = \partial\mathbf{P}/\partial t$ — вектор густини струму, зумовленого упорядкуванням зарядової системи (поляризаційний струм); T — абсолютна температура; s, s_0 — питома ентропія та її початкове значення; σ_s — виробництво ентропії; \mathbf{J}_q — вектор потоку тепла; $\mathbf{J}_{ms} = \partial\Pi_{\mathbf{m}}/\partial t$ — вектор густини потоку речовини, зумовленого локальним зміщенням маси тіла; $\mathbf{v} = \mathbf{v}_* + \rho^{-1}\partial\boldsymbol{\pi}_m/\partial t$ — вектор швидкості континуума центрів мас; \mathbf{v}_* — вектор середньої швидкості переміщення частинок тіла; \mathbf{F} — вектор масової сили; \mathfrak{K} — питома потужність джерел тепла; t — час; $\mu'_{\pi 0}$ — значення приведенного потенціалу μ'_{π} у вихідному стані, за який приймаємо стан вільного від зовнішнього навантаження необмеженого недеформованого середовища; $a_2^\sigma, a_1^\sigma, a_{e\rho}, a_\rho^\mu, a_E^p, a_{E\mu}, a_\mu^\pi, \sigma_e, \eta, \lambda, \pi_t$ — характеристики матеріалу, які приймаємо постійними; $d\dots/dt = \partial\dots/\partial t + \mathbf{v} \cdot \nabla\dots$ — повна похідна за часом; ∇ — оператор Гамільтона; $\hat{\mathbf{I}}$ — одиничний тензор; \cdot, \times — знаки скалярного та векторного добутоків.

Відзначимо, що за обраного модельного опису причиною поляризації є не лише електричне поле, але й градієнт величини μ'_{π} , що відображає нелокальність запропонованої теорії.

Розглянемо стаціонарну задачу про визначення електромеханічних полів у вільному від силового навантаження безмежному шарі діелектрика, який займає область $-l < x < l$ евклідового простору (x — декартова координата), і на поверхнях $x = \pm l$ якого відповідно підтримуються постійні значення електричного потенціалу $\varphi = \pm V$. Обмежимося ізотермічним наближенням, обираючи за базові процеси деформування, поляризації та локального зміщення маси. Якщо за ключові функції прийняти вектор переміщення $\mathbf{u} = (u, 0, 0)$, електричний потенціал φ та приведену енергетичну міру $\tilde{\mu}'_{\pi} = \mu'_{\pi} - \mu_{\pi 0}$ і врахувати, що шукані функції задачі залежать тільки від координати x , то з рівнянь (1)–(9) отримаємо таку лінійну систему ключових рівнянь [10]:

$$\begin{aligned} \left(a_1^\sigma + 2a_2^\sigma - \frac{a_{e\rho}^2}{\rho_0 a_\rho^\mu} \right) \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{a_{e\rho}}{a_\rho^\mu} \frac{\partial \tilde{\mu}'_{\pi}}{\partial x} &= 0, \\ (\varepsilon_0 - \rho_0 a_E^p) \frac{\partial \varphi}{\partial x} + \rho_0 a_{E\mu} \frac{\partial \tilde{\mu}'_{\pi}}{\partial x} &= 0, \\ \frac{\partial^2 \tilde{\mu}'_{\pi}}{\partial x^2} + \frac{1}{a_\mu^\pi a_\rho^\mu} \tilde{\mu}'_{\pi} &= \frac{1}{a_\mu^\pi a_\rho^\mu} \frac{a_{e\rho}}{\rho_0} \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{a_{E\mu}}{a_\mu^\pi} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial x^2}. \end{aligned} \quad (10)$$

Умови ненавантаженості поверхонь шару та підтримання на них вказаних вище значень електричного потенціалу, записані через ключові функції, мають вигляд

$$\left(a_1^\sigma + 2a_2^\sigma - \frac{a_{e\rho}^2}{\rho_0 a_\rho^\mu} \right) \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{a_{e\rho}}{a_\rho^\mu} \tilde{\mu}'_{\pi} = 0, \quad \varphi = \pm V. \quad (11)$$

Для забезпечення однозначності розв'язку системи рівнянь (10) цих умов недостатньо. Аналогічно Міндліну [3–5], а також з метою коректного порівняння наших і його результатів, приймемо, що питома поляризація p на поверхнях шару пропорційна значенню питомої поляризації $p_c = -(\varepsilon_0 \chi / \rho_0) V / l$, обчисленому за класичною теорією, тобто

$$a_E^p \frac{\partial \varphi}{\partial x} - a_{E\mu} \frac{\partial \tilde{\mu}'_{\pi}}{\partial x} = -k \frac{\varepsilon_0 \chi}{\rho_0} \frac{V}{l}, \quad x = \pm l, \quad (12)$$

де χ — коефіцієнт діелектричної сприйнятливості; k — коефіцієнт пропорційності, який Міндлін [3, 4] приймає рівним 0,1. Зауважимо, що значення коефіцієнта $k = 1$ відповідає класичній теорії, а $k = 0$ — умові неперервності поляризації в разі переходу через поверхні $x = \pm l$ [2–4].

У результаті розв’язування системи рівнянь (10) за крайових умов (11), (12) для визначення електричного потенціалу φ та питомої поляризації p отримуємо такі співвідношення:

$$\varphi(x) = V \frac{x}{l} + V(k-1) \frac{1}{1 + \chi^{-1} \lambda_* l \coth(\lambda_* l)} \left[\frac{x}{l} - \frac{\sinh(\lambda_* x)}{\sinh(\lambda_* l)} \right], \quad (13)$$

$$p(x) = -\chi \frac{\varepsilon_0 V}{\rho_0 l} - \chi \frac{\varepsilon_0 V}{\rho_0 l} (k-1) \frac{1 + \chi^{-1} \lambda_* l \cosh(\lambda_* x) \sinh^{-1}(\lambda_* l)}{1 + \chi^{-1} \lambda_* l \coth(\lambda_* l)}. \quad (14)$$

Тут

$$\lambda_*^2 = -\frac{1}{a_\rho^\mu a_\mu^\pi} \left[1 + \frac{a_{e\rho}^2}{\rho_0 a_\rho^\mu a_1^\sigma + 2a_2^\sigma - a_{e\rho}^2 / (\rho_0 a_\rho^\mu)} \right] \left[1 - \frac{\rho_0 a_{E\mu}^2}{a_\mu^\pi \varepsilon_0 (1 + \chi) + \rho_0 a_{E\mu}^2} \right] > 0 \quad (15)$$

і враховано, що $a_E^p = -\chi \varepsilon_0 / \rho_0$, а $a_\rho^\mu a_\mu^\pi < 0$ [14]. Відзначимо, що величина $(\lambda_*)^{-1}$ має розмірність довжини і є характерною віддаллю для розглядуваної задачі.

Якщо значення електричного потенціалу φ та питомої поляризації p відомі, то для визначення ємності C маємо [2–4]

$$C = \frac{1}{2V} \left(\varepsilon_0 \frac{d\varphi}{dx} - \rho_0 p(x) \right).$$

Звідси з використанням співвідношень (13), (14) для оберненої ємності C^{-1} одержуємо

$$C^{-1} = \frac{2l}{\varepsilon_0 (1 + \chi)} \frac{1 + \chi (\lambda_* l)^{-1} \operatorname{th}(\lambda_* l)}{1 + k \chi (\lambda_* l)^{-1} \operatorname{th}(\lambda_* l)}. \quad (16)$$

Згідно з класичною теорією, обернена ємність пропорційна товщині шару, тобто $C^{-1} = 2l / [\varepsilon_0 (1 + \chi)]$ [2–4]. Крива залежності оберненої ємності від товщини шару, наведена на рис. 1, *a*, відображає нелінійність такої залежності для малих товщин шару. Вона розташована вище від прямої (штрихова лінія), яка відповідає класичній теорії. Це узгоджується з результатами Міда щодо вимірювання ємності тонких діелектричних плівок [6, 7].

Криві на рис. 1, *б* ілюструють розподіл у шарі приведеної поляризації $p(x)/p_*$ (тут $p_* = \chi \varepsilon_0 V / (\rho_0 l)$) для $\lambda_* l = 5; 20$ (криві 1 та 2 відповідно) таведеного електричного потенціалу $\varphi(x)/\varphi_*$ (де $\varphi_* = V/l$) для тих же ж значень $\lambda_* l$ (криві 3 та 4 відповідно). Штрихова лінія відповідає лінійному розподілу потенціалу та сталому значенню поляризації у шарі, які обчислені з використанням співвідношень класичної теорії п’єзоелектриків. Бачимо, що в глибинних областях шару абсолютне значення поляризації, обчислене згідно з формулою (14), дещо менше від “класичного”, а у приповерхневих областях поляризація швидко змінюється, досягаючи заданої величини $-k \varepsilon_0 \chi V / (\rho_0 l)$. Електричний потенціал $\varphi(x)$, визначений на основі співвідношення (13), скрізь, за винятком поверхонь $x = \pm l$, набуває менших абсолютних значень, ніж потенціал, обчислений на основі класичної теорії. Порівняння кривих 1 та 2 свідчить також про те, що товщина плівки впливає на неоднорідність розподілу поляризації у ній, зокрема, зі зменшенням товщини областей неоднорідності збільшується.

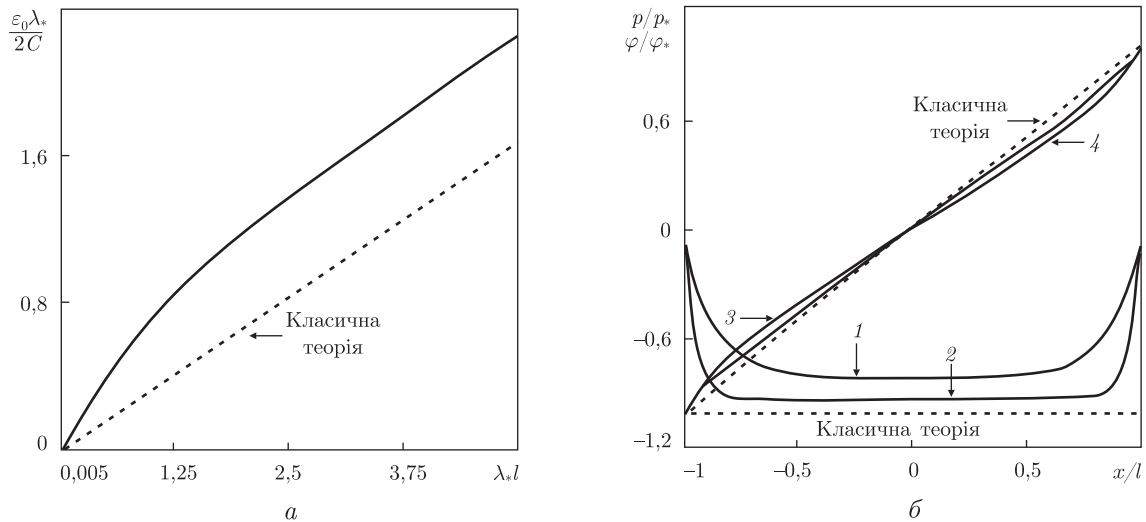


Рис. 1

Аналогічний результат отримав раніше Міндлін [3–5], припустивши, що стан діелектрика залежить також від градієнта поляризації. Однак, на відміну від Міндліна, який постулював залежність внутрішньої енергії від градієнта поляризації, у роботах [10, 11, 14] природним чином отримано співвідношення нелокальної моделі електромагнетотермомеханіки поляризованих неферромагнетних тіл завдяки врахуванню процесу локального зміщення маси.

Зазначимо також, що одержаний розв'язок задачі електропружності дозволяє досліджувати у лінійному наближенні приповерхневу неоднорідність напружено-деформованого стану та поверхневий натяг, що важливо для дослідження міцності тонких зразків.

1. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Электродинамика сплошных сред. – Москва: Наука, 1982. – 620 с.
2. Nowacki W. Efekty elektromagnetyczne w stalych cialach odkształcalnych. Warszawa: Państwowe Wydawnictwo Naukowe, 1983. – (Новацкий В. Электромагнитные эффекты в твердых телах. – Москва: Мир, 1986. – 160 с.).
3. Mindlin R. D. Polarization gradient in elastic dielectrics // Int. J. Solids and Structures. – 1968. – **4**. – P. 637.
4. Mindlin R. D. Continuum and lattice theories of influence of electromechanical coupling on capacitance of thin dielectrics films // Int. J. Solids and Structures. – 1969. – **5**. – P. 1197–1208.
5. Mindlin R. D. Elasticity, piezoelectricity and crystal lattice dynamics // J. Elasticity. – 1972. – **2**, No 4. – P. 217–282.
6. Mead C. A. Anomalous capacitance of thin dielectric structures // Phys. Rev. Letters. – 1961. – **6**, No 10. – P. 545–546.
7. Mead C. A. Electron transport mechanisms in thin insulating films // Phys. Rev. – 1962. – **128**. – P. 2088. – 2093.
8. Toupin R. A. The elastic dielectrics // J. Rat. Mech. and Analysis. – 1956. – **5**. – P. 849.
9. Toupin R. A. A dynamical theory of elastic dielectrics // Int. J. Engng. Sci. – 1963. – **1**, No 1. – P. 101.
10. Бурак Я. Й., Кондрат В. Ф., Грицина О. Р. Приповерхневі механоелектромагнітні явища у термопружних поляризованих тілах за локального зміщення маси // Фіз.-хім. механіка матеріалів. – 2007. – № 4. – С. 5–17.
11. Burak Ya., Kondrat V., Hrytsyna O. An introduction of the local displacements of mass and electric charge phenomena into the model of the mechanics of polarized electromagnetic solids // J. of Mechanics of Materials and Structures. – 2008. – **3**, Iss. 6. – P. 1037–1046.
12. Бурак Я. Й. Визначальні співвідношення локально-градієнтної термомеханіки // Доп. АН УРСР. Сер. А. – 1987. – № 12. – С. 19–23.

13. Бурак Я. Й., Кондрат В. Ф., Грицина О. Р. Математичне моделювання механотермодифузійних процесів у твердих розчинах при врахуванні локального зміщення маси // Доп. НАН України. – 2007. – № 3. – С. 59–64.
14. Кондрат В. Ф., Грицина О. Р. Рівняння електромагнітотермомеханіки поляризованих неферромагнітних тіл за врахування локального зміщення маси // Фіз.-мат. моделювання та інформаційні технології. – 2008. – Вип. 8 – С. 69–73.

Центр математичного моделювання ІППММ
ім. Я. С. Підстригача, Львів

Надійшло до редакції 30.05.2008

V. F. Kondrat, O. R. Hrytsyna

On the description of the Mead anomaly in thin dielectric films

It is shown that the model of electro-magneto-thermo-mechanical processes in dielectric materials taking a local displacement of mass into account adequately describes the anomalous dependence of the electric capacity of thin dielectric films on their thickness and describes the non-linearity of the electric fields distribution. Such an anomaly was observed by C. A. Mead in measurements of the capacitance of thin dielectric films. Our results conform to the Mindlin's results obtained within the gradient theory of piezoelectrics.