



Beynəlxalq Konfrans "Fizika-2005" International Conference "Fizika-2005" Международная Конференция "Fizika-2005"

7 - 9
İyun
June 2005
Июнь

№91
səhifə
page 339-342
стр.

Bakı, Azərbaycan

Baku, Azerbaijan

Баку, Азербайджан

ОСОБЕННОСТИ ВНУТРЕННЕГО ЭКРАНИРОВАНИЯ ДОМЕНОВ В СЕГНЕТОКЕРАМИКЕ ПРИ СВЕРХБЫСТРОМ ПЕРЕКЛЮЧЕНИИ

САДЫКОВ С.А., АГАЛАРОВ А.Ш., КАЛЛАЕВ С.Н.

*Дагестанский государственный университет,
367025 Махачкала, Россия
E-mail: ssadyk@mail.dgu.ru*

Исследованы кинетические характеристики переполяризации и возникающей при этом люминесценции сегнетокерамики на основе ЦТС в быстронарастающем электрическом поле. Показано, что туннелирование электронов в зону проводимости и ударная ионизация в концентраторах поля являются двумя основными механизмами генерирования свободных носителей заряда, ответственных за внутреннее экранирование переключающихся доменов и электролюминесценцию.

Экранирование поляризационного заряда в числе прочих факторов влияет на доменную структуру и механизм переполяризации в сегнетоэлектриках. Эволюция доменной структуры во внешнем поле протекает в неразрывной связи с процессами экранирования в течение всего времени переключения доменов. При этом интенсивность зародышеобразования и роста доменов сдерживается деполяризующим полем связанных зарядов, действие которого убывает по мере компенсации последних.

Несмотря на значительный интерес к проблеме экранирования, закономерности этого процесса однозначно не установлены. Временные характеристики переполяризации обычно связывают с диэлектрической релаксацией неравновесного экранирующего объемного заряда, постоянная времени τ_0 которой зависит от проводимости образца: $\tau_0 = \varepsilon\varepsilon_0/\sigma \sim 10^{-1} - 10^5$ с [1], где ε - диэлектрическая проницаемость, ε_0 - электрическая постоянная, σ - удельная проводимость. В результате при кратковременном (со временем $\tau < \tau_d$) переполяризующем импульсе электроны в объеме кристаллитов не успевают отреагировать на этот импульс, и остаточное деполяризующее поле может вызвать самопроизвольное обратное переключение поляризации образца. Участие в экранировании заряда поверхностных состояний с характерным временем $\tau < 10^{-6}$ с [2,3] не обеспечивает полного экранирования, поскольку переполяризация заканчивается после монодоменизации всего образца, в результате чего наблюдаются долговременные релаксационные процессы. Однако в [4] установлено, что при

переполяризации сегнетокерамики (СК) быстронарастающим высоковольтным импульсом напряжения равновесное значение внутреннего поля в образце формируется за очень короткое время $\tau \ll \tau_0$, при котором исключаются электродиффузионные механизмы экранирования. Отметим, что в поликристаллических структурах компенсация поляризационного заряда может осуществляться как свободными зарядами в объеме кристаллитов, так и зарядами на межкристаллитных границах.

В [4] предполагается, что основным механизмом возникновения внутреннего поля в случае, когда времена отклика ионной и электронной подсистем соизмеримы ($\tau \ll 10^{-6}$ с), является генерирование свободных носителей заряда посредством ударной ионизации дефектов в концентраторах электрического поля - областях с повышенной напряженностью. Как показано в [5], такие поля возникают локально в объеме образца в процессе перестройки доменной структуры вследствие взаимодействия доменных границ с точечными или линейными дефектами. Возникновение твердотельной плазмы в области концентраторов поля и последующая ее рекомбинация через примесные уровни сопровождается излучением света в видимом диапазоне. Таким образом, индуцированная переполяризацией электролюминесценция является одним из чувствительных методов изучения механизмов изменения доменной структуры сегнетоэлектриков и связанных с этим механизмом особенностей электронного экранирования.

Исследования процессов переключения в быстро нарастающих сильных электрических полях были проведены нами на сегнетоэлектрической керамике ПКР-1 ($T_c=628\text{K}$) с относительно низким значением коэрцитивного поля $E_c \approx 1 \text{ кВ/мм}$ [6]. Состав ПКР-1 принадлежит системе твердых трехкомпонентных растворов сложных оксидов типа $\text{PbTiO}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbV}'_{1/2}\text{V}''_{1/2}\text{O}_3$. Образцы в виде дисков диаметром 10 мм и толщиной 1 мм изготавливались методом горячего прессования. На торцевые поверхности дисков наносились серебряные электроды без закраин.

Импульсы излучения, индуцированные переполяризацией СК, регистрировались с боковых поверхностей образца фотоумножителями. Для исключения свечения, связанного с микроразрядами в приэлектродных областях, образцы помещались в силиконовое масло. В работе исследовались временные и температурные зависимости интенсивности $I_{\text{изл}}$ и энергии $E_{\text{изл}}$ электролюминесценции СК и их связь с интегральными характеристиками переключения поляризации (временем t_n , током i_n и динамическим коэрцитивным полем E'_c). Интегральная энергия излучения $E_{\text{изл}}$ определялась по площади осциллограммы фотоимпульса свечения.

Испытания проводились при скоростях нарастания электрического поля $\dot{E} = 0.1\text{-}80 \text{ кВ}/(\text{мм}\cdot\text{мкс})$ на высоковольтной установке по методике, описанной в [7]. Отличительной особенностью использованной нами высоковольтной установки является то, что для формирования импульсных полей с заданной величиной \dot{E} последовательно с исследуемым образцом включалась сосредоточенная индуктивность. При воздействии поля в переполяризующем направлении (векторы поля и поляризации образца антипараллельны) через образец наряду с емкостной составляющей тока течет существенно превосходящий по величине ток переключения поляризации. В результате на осциллограмме напряжения $V(t)$ появляется характерное плато, отвечающее процессу переключения доменов, который протекает при одном и том же уровне напряжения (рис. 1) и, соответственно, в объеме образца устанавливается постоянное электрическое поле. Это поле играет роль динамического коэрцитивного поля E'_c , большего статического коэрцитивного поля E_c . Наличие плато на кривой $V(t)$ указывает на интенсивное протекание процесса переполяризации сегнетоэлектрика, в связи с чем длительность плато можно интерпретировать как время переключения поляризации t_n . С увеличением скорости нарастания поля \dot{E} величина E'_c возрастает, а время переполяризации t_n уменьшается. После завершения основной части переполяризации ток убывает, э.д.с. индукции изменяет знак, что приводит к достаточно резкому возрастанию напряжения на образце. Таким образом, напряжение на образце во время переполяризации регулируется переходным

током, вследствие чего процессы переключения протекают в самосогласованном электрическом поле.

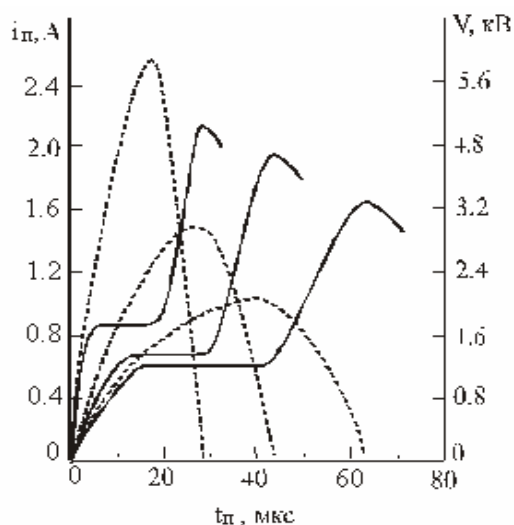


Рис. 1. Типичные осциллограммы напряжения $V(t)$ (сплошные кривые) и тока $i_n(t)$ переключения поляризации СК ПКР-1, соответствующие различным временам реполяризации.

Наблюдается корреляция между кинетикой переключения и кинетикой свечения (рис. 2). Свечение возникает в виде двух ярко выраженных пиков, появляющихся синхронно с началом переключения поляризации и исчезающих после завершения процесса. Оно индуцируется на всех этапах переключения. Однако, вследствие того, что переключения поляризации в отдельных кристаллитах протекают параллельно и независимо, невозможно однозначно связывать наблюдаемые пики свечения с основными этапами процесса переполяризации: зародышеобразованием, торцевым прорастанием зародышей, боковым разрастанием доменов и их слиянием. Интенсивность люминесценции, возрастающая с увеличением E'_c , достигает максимума не на завершающей стадии переключения, как это имеет место в импульсных полях прямоугольной формы [8], а вследствие изменения механизмов переполяризации смещается в сторону нарастающей ветви тока переключения. Отметим, что величина порогового поля ($\sim 10^4 \text{ В/см}$), с которого начинается свечение, значительно меньше величины, которая требуется для возбуждения свечения по низковольтному механизму ударной ионизации ($\sim 10^5 \text{ В/см}$).

Температурные зависимости интенсивности $I_{\text{изл}}$ и энергии $E_{\text{изл}}$ электролюминесценции в целом соответствуют температурным зависимостям интегральных характеристик переключения: времени t_n , тока i_n и коэрцитивного поля E'_c . Характер зависимостей $I_{\text{изл}}(T)$ и $E_{\text{изл}}(T)$ определяется характеристиками переполяризующего импульса напряжения, зависящими от температуры, при которой осуществляется переполяризация. По мере приближения температуры T к точке Кюри T_c коэрцитивное поле E'_c уменьшается, и уменьшается и время переключения t_n (рис. 3).

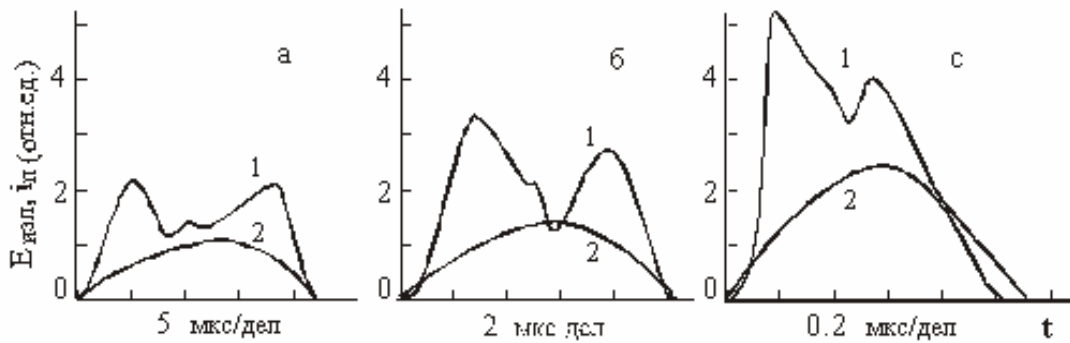


Рис.2. Схематическое изображение синхронных осциллограмм интенсивности электролюминесценции $E_{изл}$ (1) и тока переключения I_n (2) для образца ПКР-1. t_n , мкс: а – 20, б – 10, с – 1. $T = 20^\circ\text{C}$.

Уменьшение времени t_n равносильно увеличению скорости рекомбинации зарядов экранирования, ставших неравновесными после отрыва доменных границ от дефектов, в результате чего наблюдается рост интенсивности излучения. Заметим, что если при нагреве образца СК интенсификация перестройки доменной структуры обусловлено повышением подвижности доменных стенок, то при комнатной температуре этот процесс инициируется относительно высокими значениями динамического коэрцитивного поля E'_c . Согласно [4], при комнатной температуре повышение скорости нарастания поля \dot{E} , а, следовательно, и E'_c , сопровождается сокращением времени переключения t_n , и наоборот.

Из рис. 3 видно, что температурная зависимость полной энергии излучения $E_{изл}(T)$ имеет тенденцию к снижению, и подобна температурной зависимости остаточной поляризации СК $P(T)$. На зависимости $I_{изл}(T)$ обнаруживается максимум излучения. Полученные результаты свидетельствуют о том, что по мере повышения температуры наряду с уменьшением E'_c происходит термическая деполяризация образца СК. Уменьшение переключаемого заряд является основной причиной уменьшения величины полной энергии излучения при некотором росте его интенсивности.

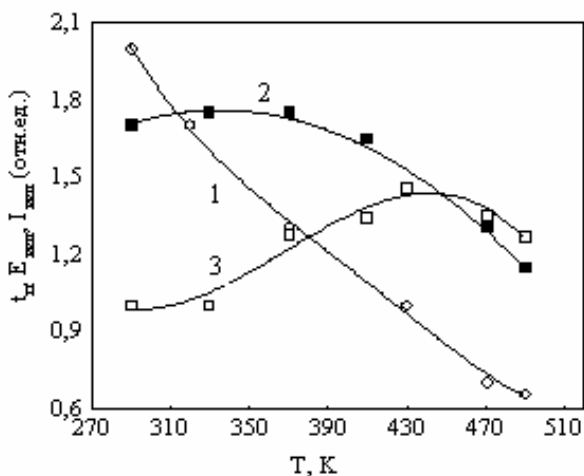


Рис. 3. Температурные зависимости: 1 - времени переполяризации t_n , 2 - энергии излучения $E_{изл}$, 3 - амплитудной интенсивности излучения $I_{изл}$.

Эффект излучения света при переполяризации был объяснен в [9] в рамках представлений о полупроводниковых свойствах BaTiO_3 . Предполагалось, что внутреннее деполяризующее поле $E \approx 4\pi P$ (для BaTiO_3 по оценкам [10] $E \sim 3 \times 10^6$ В/см) искривляет зоны, вызывая рождение электронно-дырочных пар до тех пор, пока не наступает термодинамическое равновесие, при котором поле E оказывается экранированным избыточными носителями. Таким образом, экранирование осуществляется не носителями, стянутыми из зоны проводимости, а электронами, генерированными из валентной зоны путем автоэлектронной эмиссии. Такого же мнения придерживаются и авторы [11]. Они отмечают, что в огромном поле $E \approx 4\pi P$ запрещенная зона кристалла не создает энергетического барьера для валентных электронов. В результате эффекта Зинера валентная зона беспрепятственно поставляет электроны для экранирования связанного заряда. В этом случае связанные заряды экранируются собственными электронами и дырками на торцах зародышей по мере их роста, а значит, при быстром переключении рост и экранирование зародышей являются параллельными процессами.

В свете изложенных рассуждений представленные на рис. 2 осциллограммы люминесценции можно интерпретировать следующим образом. Динамика зародышеобразования такова, что в образце непрерывно зарождаются и уничтожаются зародыши, не достигшие критического радиуса. Они достигают критического размера, когда поле в образце приближается к динамическому коэрцитивному полю E'_c . К этому времени на осциллограмме напряжения появляется характерное плато (рис. 1), указывающее на начало интенсивной перестройки доменной структуры. Неоднородность электрического поля в объеме сегнетоэлектрика, особенно резко выраженная на торцах развивающихся игловидных доменов, непосредственно связана с увеличением вероятности туннелирования электронов в зону проводимости. Заметим, однако, что процессы экранирования будут усиливаться преимущественно в непосредственной близости от прорастающих игловидных доменов, и, следовательно, приводить к ослаблению в этой области деполяризующего поля. Поэтому процессы

зародышеобразования здесь будут идти значительно интенсивнее, чем в не переключенном междоменном пространстве, что будет приводить к нарастанию процессов пристеночного зародышеобразования.

Одновременно протекающие процессы рекомбинации электронов определяют квазиравновесное состояние электронной подсистемы, концентрация носителей в которой остается достаточно высокой. Возникающее в процессе рекомбинации свечение, обладающее той особенностью, что интенсивность люминесценции, появляющейся сразу с началом переключения сегнетоэлектрика, непропорционально возрастает с ростом E_c' (рис. 2), подтверждает предположение об автоэлектронной природе внутреннего экранирования, по крайней мере, на начальных стадиях переключения. Таким образом, в предлагаемой нами модели предполагается, что в результате прорастания антипараллельных игловидных доменов в объеме сегнетоэлектрика возникают локально неоднородные электрические поля, в области которых возникают условия для

интенсивной генерации электронов, туннелирующих в зону проводимости благодаря сильному изгибу зон. В результате возникает неоднородная электронная жидкость, сконцентрированная преимущественно у торцов растущих доменов. Важным моментом здесь является то, что представленная картина квазистатична, т. е. сохраняется на протяжении всего процесса переключения, определяя особенность динамики быстропереключающейся доменной структуры. Туннелирование электронов в зону проводимости и ударная ионизация в концентраторах поля являются двумя основными механизмами генерирования свободных носителей заряда, ответственных за электролюминесценцию и внутреннее экранирование доменной структуры в сегнетоэлектриках при сверхбыстром переключении поляризации в самосогласованном электрическом поле.

Работа поддержана РФФИ №03-02-17762.

-
- [1]. Gundel H., Handerek J., Riege H. // J. Appl. Phys. 1991. V. 69. N 2. P.975-982.
- [2]. Фридкин В.М.. Сегнетоэлектрики-полупроводники.-М.: Наука, 1976. 408 с.
- [3]. Донцова Л.И., Тихомирова Н.А., Шувалов Л.А. // Кристаллография. 1994. Т. 39. N 1. С. 158-175.
- [4]. Садыков С.А., Агаларов А.Ш.// Письма в ЖТФ. 1990. Т. 16. Вып. 17. С. 32-35.
- [5]. Даринский Б.М., Сидоркин А.С. // ФТТ. 1984. Т. 26. Вып. 6. С. 1634-1639.
- [6]. Данцигер А.Я., Разумовская О.Н., Резниченко Л.А., Гринева Л.Д., Девликанова Р.У., Дудкина С.И., Гавриляченко С.В., Дергунова Н.В., Клевцов А.Н. Высокоэффективные пьезокерамические материалы. Ростов-на-Дону, 1994.
- [7]. Садыков С.А., Турик А.В. ФТТ. 2003. Т. 45. Вып. 11. С. 2074-2078.
- [8]. Флерова С.А. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1984. Т. 48. N 6. С. 1233-1237.
- [9]. Гуро Г.М., Иванчик И.И., Ковтонюк Н.Ф. Титанат бария. - М.: Наука, 1973. 71 с.
- [10]. Miller R.C., Savage A. // J. Appl. Phys. 1960. V. 31. N 4. P. 662-669.
- [11]. Айрапетов А.Ш., Иванчик И.И., Лебедев А.Н., Левшин И.В., Тихомирова Н.А. // ДАН СССР. 1990. Т. 311. N 3. С. 594-597.