

## ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ПЕРЕПОЛЯРИЗАЦИИ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛОВ В ИНЖЕКЦИОННОМ РЕЖИМЕ

*А. Г. Масловская\*, И. Б. Копылова*

*Амурский государственный университет  
675027, Благовещенск, Амурская обл., Россия*

Поступила в редакцию 2 февраля 2009 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований процесса переполаризации сегнетоэлектрического кристалла ТГС в режиме инъекции электронных пучков растрового электронного микроскопа под поверхностный слой. Построена серия моделей, отражающая динамику переполаризации сегнетоэлектрического кристалла под действием инжектированного заряда. Реализация моделей основана на принципах эволюции доменных структур с учетом анализа возможных механизмов переполаризации сегнетоэлектрических образцов. Разработанная на этих принципах математическая модель дает качественное сходство между модельными импульсами тока и экспериментально полученными в инжекционном режиме.

PACS: 77.80.-e

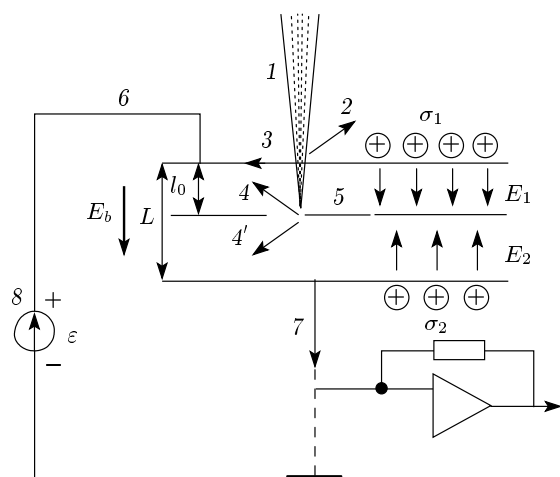
При изучении процессов, связанных с эволюцией доменной структуры и переключением поляризации, обычно применяют стандартные методики, основанные на приложении разности потенциалов к двум электродам, нанесенным на грани образца. В подобных экспериментах временные и полевые зависимости определяют либо в плавно меняющихся синусоидальных полях, либо в импульсных полях различной формы (прямоугольные, пилообразные, трапецевидные и др.) [1]. Однако существуют направления, опирающиеся на использование нестандартных методов переполаризации сегнетоэлектрических кристаллов [2–5]. Например, в работе [2] при исследовании переполаризации кристалла ТГС в качестве электродов были использованы нематические жидкие кристаллы. В работе [3] предлагается методика применения электродов, представляющих собой прижимные микроканальные пластины, которые одновременно способны регистрировать экзотическую электронную эмиссию.

В растровой электронной микроскопии облучение одной из поверхностей электронным пучком приводит к неконтролируемому дрейфу доменной структуры сегнетоэлектриков, обусловленному за-

рядкой поверхности. В работе [5] разработана методика одновременного наблюдения и регистрации процесса переполаризации, который происходит под воздействием инжектированного заряда в приповерхностный слой (методика инжекционного контакта). При повышенных ускоряющих напряжениях (15–40 кэВ) электроны способны проникать сквозь тонкий электрод в глубь образца. Инъекция зарядов приводит к появлению в кристалле сегнетоэлектрика механизмов, инициирующих процесс переполаризации в необлученной части образца. Инжектирование электронов в кристалл сегнетоэлектрика вызывает накопление заряда в облученном слое. Он индуцирует появление зарядов на верхнем и нижнем электродах. Накопление зарядов вызывает появление полей  $E_1$  и  $E_2$  в соответствующих слоях кристалла. Схема распределения электронных потоков в образце, облученном неподвижным электронным пучком, показана на рис. 1.

Хотя инжектированный заряд распределен в слое некоторой толщины, будем рассматривать его в виде плоскости, находящейся на некоторой эффективной глубине  $l_0$ . Заметный вклад в поляризационный ток будет давать только переполаризация необлученной части кристалла. Именно поле, возникающее в необлученной части кристалла, способно вы-

\*E-mail: maslovskayaag@mail.ru



**Рис. 1.** Схема распределения электронных потоков в образце: 1 — зонд; 2 — вторичные электроны; 3 — электроны, поглощенные в электроде; 4, 4' — утечки; 5 — накапливаемый слой заряда;  $\sigma_1, \sigma_2$  — наведенные в электродах заряды; 6, 7 — потоки электронов во внешних цепях; 8 — источник внешнего смещающего поля;  $E_1, E_2$  — поля в поверхностном слое и толще образца

звать переполяризацию основного объема образца.

Выражение для поля  $E_2$  с учетом наведенных зарядов имеет вид

$$E_2 = -\frac{\sigma}{\epsilon\epsilon_0} \frac{l_0}{L}, \quad (1)$$

где  $\epsilon$  — диэлектрическая проницаемость образца,  $\epsilon_0$  — электрическая постоянная,  $\sigma$  — поверхностная плотность накопленного в облученном слое заряда с учетом знака,  $L$  — толщина кристалла.

Поляризационный ток регистрируется усилителем, подключенным либо к верхнему, либо к нижнему электроду. Низкое входное сопротивление усилителя создает режим короткого замыкания на землю любого электрода. При переполяризации образца во внешних цепях верхнего и нижнего электродов регистрируются одинаковые токи переполяризации основного объема (с точностью до знака и константы, равной эффективному току зонда). На рис. 2 показан импульс тока переполяризации образца, предварительно поляризованного навстречу электронному зонду. От момента включения зонда до начала переполяризации проходит некоторое время, необходимое для накопления в слое стартового заряда, создающего в необлученной части кристалла поле  $E_2$ , равное полю переполяризации.

При регистрации поляризационного тока с верхнего электрода эффективный ток зонда проявляется с момента включения в виде ступеньки, из ко-

торой впоследствии вычитается поляризационный ток. На рис. 2 видна эквивалентность импульсов тока с обоих электродов. Импульсы тока переполяризации имеют остrokонечную форму, характерную для импульсной методики. Большинство импульсов тока характеризуется следующими основными особенностями. После некоторой задержки, вызванной необходимостью накопления стартового заряда, ток в импульсе возрастает скачком. После этого следует фаза дополнительного плавного нарастания тока, завершающаяся окончательным убыванием. Длительность импульса интегрального поляризационного тока определяется плотностью тока зонда и составляет в экспериментах десятки секунд. Полный заряд переполяризации соответствует величине  $2P_S S$ .

Исследование особенностей формирования поляризационного тока в инжекционном режиме можно провести с привлечением методов математического моделирования. Для теоретического описания кинетики переключения поляризации используются различные подходы, в том числе известны модификации статистической теории кристаллизации Колмогорова–Аврами [6, 7], а также направление исследования токов переполяризации на основе концепции фракталов [8]. В практике моделирования элементарных процессов переполяризации обычно рассматриваются два основных механизма: движение, осуществляемое путем бокового роста зародышей, прилегающих к доменной стенке, и сквозное прорастание клинообразных доменов [9]. Экспериментальные исследования переполяризации в режиме инжекционного контакта [10] показывают, что форма доменов значительного размера в процессе переполяризации не изменяется, а наблюдается лишь ее эрозия, что свидетельствует об отсутствии заметного бокового движения доменных стенок, которое наблюдается во многих других случаях.

С учетом возможных особенностей поведения доменной стенки в инжекционном режиме были рассмотрены различные модели ее движения. В простейшей модели полагалось, что переполяризация происходит путем расширения домена в виде плоского слоя некоторой толщины, находящегося между инжектированным слоем и нижним электродом. Переполяризация осуществляется за счет направленного движения вниз незаряженной доменной границы. Источником поля  $E_2$  является инжектированный заряд, находящийся в неподвижном слое с глубиной залегания  $l_0$  с поверхностной плотностью заряда  $\sigma = -jt$ , где  $j$  — плотность инжекционного тока.

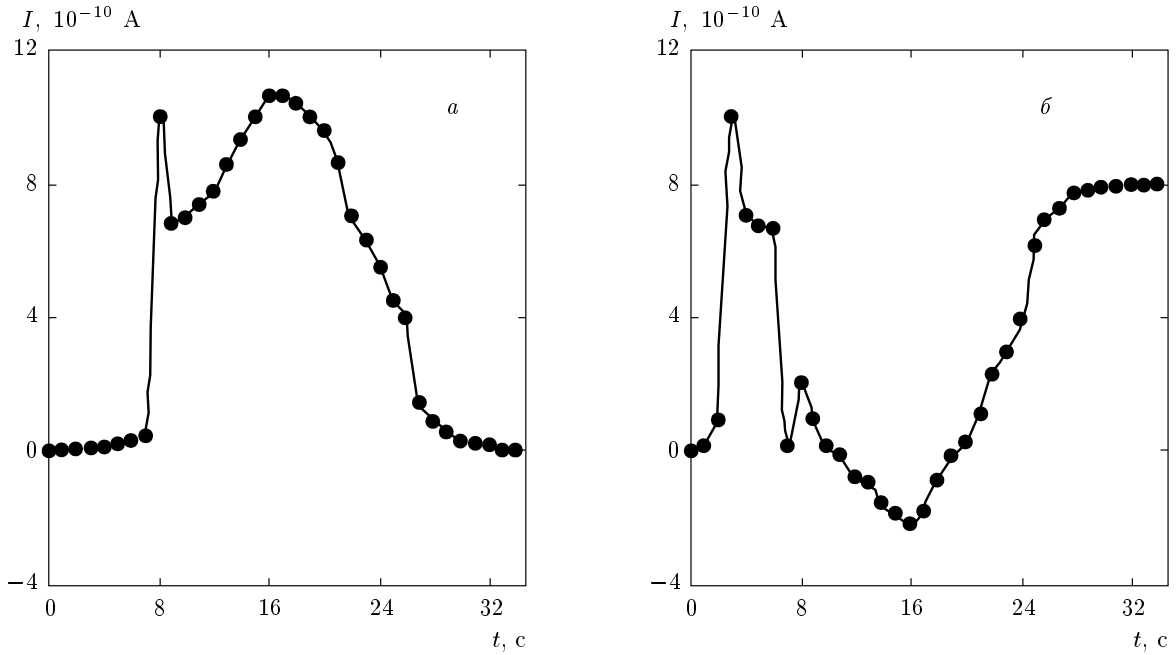


Рис. 2. Импульсы поляризационного тока в ТГС в инжекционном режиме с нижнего (а) и верхнего (б) электродов: ток зонда составляет 0.55 нА, ускоряющее напряжение — 15 кВ

Существует множество моделей, отражающих зависимости скорости движения доменной границы от поля  $E$ , но наиболее распространенным на практике является выражение, которое во многих случаях подтверждается экспериментальными данными [11]:

$$v = v_{\infty} \exp\left(-\frac{\delta}{E}\right), \quad (2)$$

где  $v_{\infty}$  — максимальная скорость движения стенки при  $E \rightarrow \infty$ ,  $\delta$  — поле активации.

Тогда можно получить дифференциальное уравнение, определяющее скорость движения доменной границы:

$$\frac{dx}{dt} = \frac{L}{\tau_1} \exp\left(-\frac{\delta}{E}\right), \quad (3)$$

где  $\tau_1 = L/v_{\infty}$  — параметр модели, имеющий смысл времени прорастания границы сквозь кристалл.

Если поле  $E$  имеет вид (1), то дифференциальное уравнение (3) преобразуется к следующему виду:

$$\frac{dx}{dt} = \frac{L}{\tau_1} \exp\left(-\frac{\tau_2}{t}\right), \quad (4)$$

$$l_0 \leq x(t) \leq L, \quad x(0) = l_0,$$

где  $\tau_2 = \delta \varepsilon_0 L / j l_0$  — характерный параметр, имеющий смысл времени накопления заряда, создающего поле  $E_2 = \delta$ , при данной плотности тока  $j$ .

Поляризационный ток, определяемый изменением переполаризуемого объема  $dV$  при движении

стенки [3], будет зависеть от скорости изменения текущей координаты:

$$I(t) = 2P_S \frac{dV}{dt} = 2P_S S \frac{dx(t)}{dt}. \quad (5)$$

Полагая при нормировке единичную толщину кристалла,  $L = 1$ , и единичную площадь электродов  $S = 1$ , определим  $l_0$  по отношению к  $L$ . В образце толщиной  $L \sim 1$  мм средняя глубина проникновения заряда  $l_0 \sim 3$  мкм (при ускоряющих напряжениях 15 кВ), поэтому в нормированном виде  $l_0$  имеет порядок 0.003.

Поляризационный ток имеет форму, повторяющую зависимость скорости от поля  $v(E)$ . Кривая тока характеризуется плавным нарастанием с дальнейшим насыщением.

Следующую модель можно ввести в рассмотрение, основываясь на первой модели. Однако в этом случае предположим, что доменная стенка является заряженной с поверхностной плотностью  $\pm 2P_S$ . В этом случае заряд на глубине  $l_0$  имеет поверхностную плотность  $\sigma' = -jt + 2P_S$ .

Суперпозиция полей, учитывающая как поле, связанное с накоплением инжектированного заряда в слое, так и дополнительное поле, учитывающее перемещение заряженного слоя в глубь образца, определяется выражением

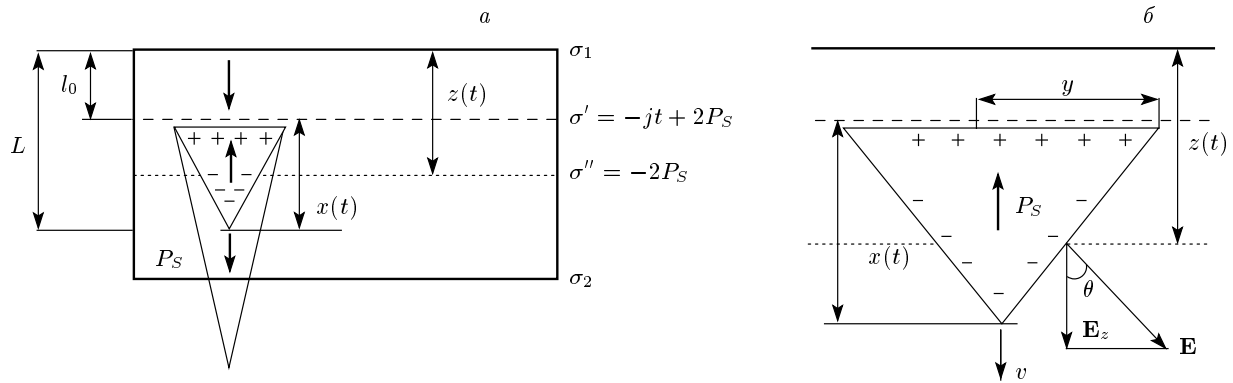


Рис. 3. а) Схема распределения зарядов в модели, б) фрагмент прорастания домена

$$E = \frac{1}{\varepsilon\varepsilon_0 L} (jtl_0 + 2P_S x(t) - 2P_S l_0). \quad (6)$$

Уравнение (4) в этом случае преобразуется к виду

$$\frac{dx}{dt} = \frac{L}{\tau_1} \exp\left(-\frac{\tau_2}{t - \tau_3 + \tau_3 x(t)/l_0}\right), \quad (7)$$

$$l_0 \leq x(t) \leq L, \quad x(0) = l_0,$$

где  $\tau_3 = 2P_S/j$  — параметр модели, имеющий смысл времени, в течение которого данный ток создаст плотность заряда  $\sigma = 2P_S$ .

В отличие от формы тока для первой модели во втором случае наблюдается более крутой фронт нарастания тока. Это связано с тем, что изменение положения  $x(t)$  движущейся плоскости отрицательного заряда создает дополнительное усиление поля  $E$ . Поскольку  $l_0$  достаточно мало, при прохождении расстояния порядка нескольких  $l_0$  поле резко усиливается и скорость движения границы достигает насыщения  $v_\infty$ . Ток быстро нарастает и при движении границы с максимальной скоростью остается постоянным.

Наибольший интерес представляет следующая обобщенная модель, основанная на предположении, что доменная граница прорастает клиньями и наблюдается движение зубчатого фронта (рис. 3). Положим, что клин прорастает с неизменной величиной ширины основания  $2y$ , нормированной к величине  $L$ , при этом угол  $\theta$  доменной стенки изменяется. Заряд, существующий на стенках клина, создает также индуцированный заряд на электродах, поле которых эквивалентно заряду зеркального отражения. Для расчета полей зубчатая граница заменялась некоторой эквивалентно заряженной плоскостью, находящейся на середине клина. При прохождении вершиной клина  $x(t)$  границы  $L-l_0$  начинается убывание поляризованного тока.

Выражение для поляризованного тока после ряда преобразований имеет следующий вид:

$$I(t) = \begin{cases} 2P_S Ly \frac{dx}{dt} & \text{при } 0 \leq x \leq L - l_0, \\ 2P_S Ly \frac{L^2}{x^2} \frac{dx}{dt} & \text{при } L - l_0 < x \leq 2(L - l_0). \end{cases} \quad (8)$$

В данной модели при прорастании клина изменение ориентации заряженной стенки будет приводить к ослаблению продольной компоненты поля  $E_z$ :

$$E_z = E \cos \theta = 2P_S \frac{z(t)}{\varepsilon\varepsilon_0 L} \cos^2 \theta, \quad (9)$$

$$\cos^2 \theta = \frac{y^2}{x^2(t) + y^2}.$$

Убывание отклика соответствует этапу завершения поляризации, что происходит после прорастания вершины клина сквозь образец.

Вычисляя результирующее поле и имея в виду формулу (9), с учетом нормировки дифференциальное уравнение преобразуется к виду

$$\frac{dx}{dt} = \frac{L}{\tau_1} \times \exp\left(-\frac{\tau_2}{t - \tau_3 + \tau_3 \cos^2 \theta (1 + x(t)/(2l_0))}\right), \quad (10)$$

$$0 \leq x(t) \leq 2(L - l_0), \quad x(0) = 0.$$

Результат моделирования кривых тока, повторяющих основные экспериментальные зависимости, представлен на рис. 4. Форма поляризованного тока в определенном диапазоне параметров отличается характерным всплеском в начальный момент переполаризации, дальнейшим нарастанием и убыванием до нулевого значения. Анализ формы тока показывает, что сначала скорость стенки резко увели-

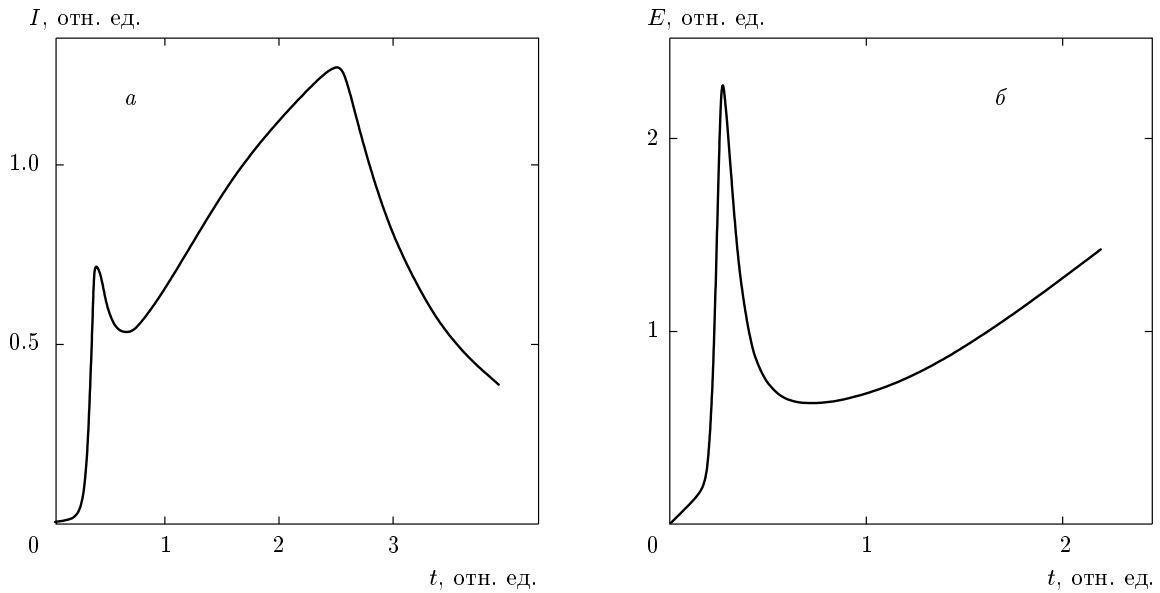


Рис. 4. а) Форма поляризационного тока ( $\tau_3 = 0.3$ ,  $\tau_2 = 1$ ,  $y = 0.03$ ), б) изменение поля  $E$  в необлученной части кристалла;  $\tau_3 = \tau_2 = 0.5$ ,  $y = 0.03$

чивается с последующим убыванием. Причиной замедления движения границы в нашей модели является уменьшение поля за счет наклона стенки. На рис. 4б показана кривая изменения поля в необлученной части в процессе переполаризации кристалла. Механизмы торможения доменной стенки наблюдаются также и при использовании других методик осуществления процесса переполаризации. Так, в работе [12] наблюдалось торможение стенки после прохождения расстояния, равного  $10^3 \text{ \AA}$ , и ее искривление, которое объясняется наличием экранирующих эффектов, влияющих на процесс переполаризации.

Серия последовательно усложняющихся моделей позволила выявить роль различных элементов модели в формировании поляризационного тока. Основные факторы, определяющие поведение модели, соответствуют экспериментально наблюдаемым: наличие системы обратной связи между движением границы и усилением результирующего поля, что объясняет резкое увеличение скорости движения границы; торможение и дальнейшее плавное нарастание тока; существование механизма, обеспечивающего убывание сигнала до нуля. Такой механизм основан на особенностях клинообразного характера нарастания доменов.

## ЛИТЕРАТУРА

1. И. С. Желудев, *Основы сегнетоэлектричества*, Атомиздат, Москва (1973), с. 463.
2. Н. А. Тихомирова, А. В. Гинзберг, Л. И. Донцова, С. А. Пикин, Л. А. Шувалов, *Кристаллография* **30**, 330 (1985).
3. Г. И. Розенман, В. А. Охупкин, Ю. Л. Чепелев, В. Я. Шур, *Письма в ЖТФ* **39**, 397 (1984).
4. A. Sogr, A. Maslovskaya, and I. Kopylova, *Ferroelectrics* **341**, 29 (2006).
5. A. A. Sogr and I. B. Kopylova, *Ferroelectrics* **191**, 193 (1997).
6. А. Лайнс, М. Гласс, *Сегнетоэлектрики и родственные им материалы*, Москва (1981), с. 736.
7. В. Я. Шур, С. Д. Макаров, Н. Ю. Пономарев, В. В. Волегов, Н. А. Тонкачева, Л. А. Суслов, Н. Н. Салащенко, Е. Б. Клюенков, *ФТТ* **38**, 1889 (1996).
8. V. Ya. Shur, E. L. Romyantsev, and S. D. Makarov, *J. Appl. Phys.* **84**, 445 (1998).
9. Р. П. Мейланов, С. А. Садыков, *ЖТФ* **69**, 128 (1999).
10. А. А. Согр, И. Б. Копылова, *Изв. РАН, сер. физ.* **64**, 1199 (2000).
11. Л. И. Донцова, Н. А. Тихомирова, Л. Г. Булатова, В. И. Дорогин, А. А. Чеботарев, А. В. Шильников, Л. А. Шувалов, *ФТТ* **29**, 1041 (1987).
12. D. R. Callaby, *J. Appl. Phys.* **36**, 2751 (1965).