

## Локальное формирование заряда в $\text{LiNbO}_3$ с помощью подвижного иглообразного электрода

© С.О. Фрегатов, А.Б. Шерман

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия.

E-mail: sherman@asher.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 30 июля 1998 г.)

Показано, что локальное формирование электрического заряда в приповерхностной области кристаллов ниобата лития может быть осуществлено как посредством локальной переполаризации образцов, так и с помощью локальной инжекции электрических зарядов с иглообразного электрода. При исследовании характеристик зарядового рельефа и механизма его образования использовано явление локального изменения двулучепреломления в образце вблизи заряженной области, связанное с электрооптическим эффектом.

Диэлектрики, обладая низкой электропроводностью, способны длительное время сохранять созданное в них неравновесное пространственное распределение электрического заряда. Формирование такого распределения может осуществляться различными способами. В фоточувствительных диэлектриках, например, заряженные области могут быть созданы под воздействием лазерного излучения. Оно генерирует в образце свободные носители заряда, которые затем перераспределяются во внутренних электрических полях кристаллической решетки [1]. В сегнетоэлектрическом диэлектрике зарядовый рельеф может быть создан посредством формирования в кристалле доменной структуры с заданным расположением заряженных доменных стенок. Наконец, для образования такого рельефа может быть использован эффект инжекции носителей заряда [2] в диэлектрик из внешнего электрода.

Одноосный сегнетоэлектрик ниобат лития, который обладает высокими значениями удельного сопротивления, спонтанной поляризации и электрооптических коэффициентов, является одним из наиболее удобных материалов для изучения явлений, связанных с образованием неравновесного пространственного распределения заряда. В частности, благодаря большому электрооптическому эффекту в нем возможна визуализация заряженных областей.

В настоящей работе экспериментально исследуется локальное внедрение электрического заряда в ниобат лития при сканировании его поверхности иглообразным электродом. Такой электрод выполняет роль концентратора электрического поля в области соприкосновения с поверхностью кристалла и одновременно подвижного (перемещающегося по поверхности) источника инжектируемого заряда. Для изучения механизма образования зарядового рельефа, определения его геометрических характеристик и длительности существования используется эффект локального изменения двулучепреломления в кристалле вдоль траектории движения острия.

На рис. 1 представлена основная схема эксперимента. Монокристаллический образец 1 помещается на поверх-

ность первого электрода — полупрозрачной проводящей пленки хрома 2 нанесенной на дно кюветы 3. К поверхности кристалла подводится укрепленное на микроманипуляторе вольфрамовое острие 4 (радиус кривизны конца острия, как и в предыдущих экспериментах [3,4], составлял  $\approx 1 \mu\text{m}$ ). Оно служит вторым электродом и имеет возможность перемещаться в горизонтальном и вертикальном направлениях. Для предотвращения электрических пробоев кювета с образцом заполняется трансформаторным маслом. Наблюдение за движением острия и возникающим при этом локальным изменением двулучепреломления в образце осуществляется с помощью поляризационного микроскопа 5 в проходящем свете. Возможно как "прямое" наблюдение пространственного рельефа — со стороны поверхности, которой касается подвижный электрод (рис. 1, *a*), так и наблюдение "сбоку" — через боковую грань кристалла (рис. 1, *b*). При исследовании локальных изменений двулучепреломления анализатор микроскопа находится в положении, близком к скрещенному по отношению к поляризатору, а образец ориентируется так, чтобы его собственное двулучепреломление не создавало препятствий для наблюдения.

Рассмотрим вначале возможность создания заряженного рельефа посредством локальной переполаризации образца [4].

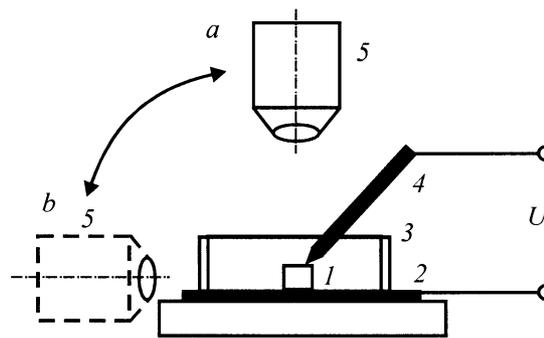
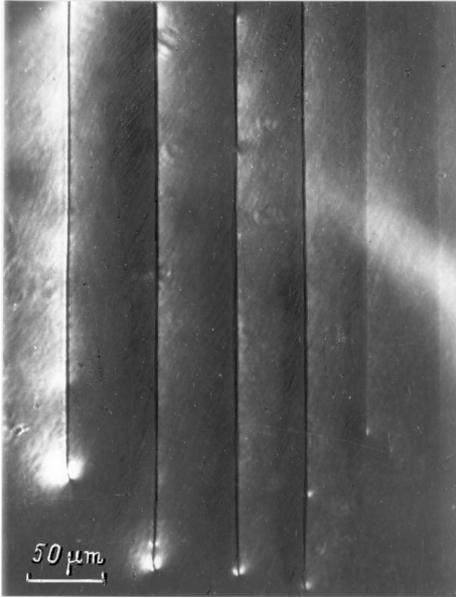


Рис. 1. Схема экспериментов. *a* — "прямое" наблюдение, *b* — наблюдение "сбоку".



**Рис. 2.** Участок поверхности Z-среза кристалла ниобата лития в поляризованном свете после проведения иглообразным электродом параллельных линий. От линии к линии разность потенциалов уменьшается (от 2.7 kV) с шагом  $\approx 0.4$  kV. Скорость движения острия  $\approx 1$  mm/s.

На рис. 2 показан фрагмент поверхности Z-среза монодоменного образца ниобата лития ("прямое" наблюдение), на которой иглообразным электродом были проведены параллельные линии при разных значениях напряжения ( $U$ ). Фотография свидетельствует об изменении двулучепреломления в кристалле вдоль этих линий. Этот эффект фиксируется при направлении электрического поля вблизи острия, противоположном направлению спонтанной поляризации в кристалле, и при напряжении на электродах, превышающем пороговое значение (в нашем случае — 500 V).

При комнатной температуре полученное изображение сохраняется достаточно долго: ослабление его контраста становится заметным спустя двое суток после осуществления переполаризации, однако картину удается различить и через месяц. Нагрев образца до  $100^\circ\text{C}$  приводит почти к полному исчезновению изображения за 2–3 минуты.

Ранее [3] методом химического травления было установлено, что при приведенных выше условиях в образце происходит локальное переключение поляризации (образование доменов).

В одноосных сегнетоэлектрических кристаллах домены с противоположным направлением поляризации оптически неразличимы. Это связано с тождественностью их оптических индикатрис. Возникающий при переполаризации оптический контраст следует связывать с состоянием областей кристалла вблизи доменных стенок. Действительно, наблюдение "сбоку" [4] позволило установить, что обнаруженный оптический контраст (рис. 2)

связан с оптической неоднородностью вблизи стенок образовавшихся иглообразных доменов. Эти домены, квазипериодически расположенные (период  $\approx 2 \mu\text{m}$ ) вдоль проведенных линий, вытянуты в направлении оси Z. Их длина при  $U = 2.5$  kV —  $55 \mu\text{m}$ , а поперечный размер  $\approx 1 \mu\text{m}$ .

У доменов, локализованных вблизи поверхности кристалла (не сквозных), доменные стенки не могут во всех своих точках быть параллельными оси Z. Существуют участки стенок, где  $P_n$  (составляющая спонтанной поляризации, ортогональная к поверхности стенки) отлична от нуля. На таких участках образуется электрический заряд с плотностью  $q \approx 2P_n$ , электрическое поле которого влияет на локальное двулучепреломление.

Считая, что рассматриваемая оптическая неоднородность вызвана электрическим полем локализованных в доменных стенках зарядов, легко объяснить наблюдаемое с течением времени ослабление контраста полученного изображения. После образования локального заряда собственные свободные носители в кристалле начинают его компенсировать, что приводит со временем к уменьшению локального электрического поля.

Локальная переполаризация с помощью иглообразного электрода может быть осуществлена и в образцах Y-среза [3]. Пороговое напряжение в этом случае — 900 V. Образующиеся иглообразные домены, выявленные методом химического травления, вытягиваются вдоль поверхности кристалла в направлении оси Z. При  $U = 2.5$  kV длина доменов достигает  $15 \mu\text{m}$ , а поперечный размер  $\approx 1 \mu\text{m}$ . При этом, однако, изменения оптического двулучепреломления вблизи доменных стенок зафиксировать не удается.

В [3] показано, что при локальной переполаризации в образцах Y-среза домены растут в тонком приповерхностном слое ( $\sim 0.15 \mu\text{m}$ ). Поляризационные и электрические свойства этого слоя могут заметно отличаться от объемных, что может быть связано как с близостью границы образца и соответствующими пограничными явлениями, так и с влиянием реальной поверхности, свойства которой в существенной степени определяются физико-химической обработкой. В этом слое может наблюдаться повышенная проводимость и, как следствие, более быстрая компенсация локализованных в доменных стенках электрических зарядов. По-видимому, именно малое время компенсации таких зарядов не позволило обнаружить связанное с ним быстрое изменение локального двулучепреломления в образцах Y-среза.

Наряду с долговременным изменением локального двулучепреломления, наблюдавшимся в образцах Z-среза при переполаризации, в экспериментах проявляется еще один оптический эффект. Он заключается в появлении в образцах как Z-, так и Y-срезов по траектории перемещения острия полосы оптического контраста с коротким временем существования ( $t \leq 20$  s), которая представляет собой шлейф, тянущийся за острием по поверхности кристалла. Явление наблюдается при обоих знаках поляриности острия. Минимальное напряжение,

при котором удавалось его зафиксировать, было существенно ниже порогового напряжения переполаризации. С ростом напряжения контраст изображения увеличивается. Как правило, к этому приводит и увеличение скорости перемещения острия.

В образцах  $Y$ -среза упомянутая полоса начинает фиксироваться уже при  $U = 200 \text{ V}$  и вплоть до  $U = 3 \text{ kV}$  имеет ширину  $1\text{--}2 \mu\text{m}$ . Появление ее не зависит от направления перемещения острия относительно оси  $Z$ . В образцах  $Z$ -среза аналогичный эффект в виде тянущегося за острием диффузного шлейфа удается различить при отсутствии более контрастных изменений двулучепреломления, связанных с переполаризацией.

Возможность наблюдения рассматриваемого кратковременного эффекта существенно зависит от процедуры физико-химической обработки поверхности кристалла (травление, химико-механическая полировка). В образцах  $Y$ -среза кратковременное изменение двулучепреломления фиксировалось только после их продолжительного травления в смеси азотной и плавиковой кислот при температуре  $\approx 100^\circ\text{C}$  (толщина образцов при этом уменьшалась на  $\approx 20 \mu\text{m}$ ). В последующих экспериментах травление проводилось при различных температурах в интервале от  $60$  до  $100^\circ\text{C}$ . Эти исследования показали, что длительность существования изменений в двулучепреломлении может обратимо изменяться в пределах  $0 < t < 20 \text{ s}$ . Уменьшение температуры травления, как правило, приводит к увеличению  $t$ . При продолжительной химико-механической полировке образцов  $Z$ -среза эффект кратковременного изменения двулучепреломления также становится более заметным. Однако в этом случае значение  $t$  не превысило  $5 \text{ s}$ .

Обсудим эффект кратковременного изменения двулучепреломления. Как указывалось, он наблюдается при обоих знаках полярности острия независимо от того, осуществляется при этом переключение поляризации или нет. Представляется естественным связать этот эффект с инжекцией в диэлектрик свободных носителей заряда. В таком случае он должен наблюдаться и в других диэлектрических (несегнетоэлектрических) материалах, обладающих достаточно низкой проводимостью и большим электрооптическим эффектом. Действительно, кратковременное изменение двулучепреломления по траектории движения иглообразного электрода было зафиксировано нами и в кристаллах  $\text{SrTiO}_3$ , не обладающих, как известно, спонтанной поляризацией.

Важным доказательством роли инжекции в наблюдаемых явлениях служит следующий эксперимент. Оказалось, что созданные в образце  $\text{LiNbO}_3$   $Z$ -среза путем локальной переполаризации долговременные изменения двулучепреломления могут быть устранены с помощью того же иглообразного электрода. Для этого достаточно вновь коснуться этим электродом изучаемой поверхности, предварительно изменив его полярность на противоположную. Так, при  $U = 2 \text{ kV}$  "стирание изображения" происходит внутри области с радиусом  $\approx 30 \mu\text{m}$  вблизи электрода за время  $\approx 5 \text{ s}$ . Этот эффект, очевидно,

обусловлен компенсацией связанных зарядов в доменных стенках инжектируемыми с электрода зарядами противоположного знака.

Этот эксперимент со "стиранием" подтверждает также и правомерность предположения о том, что в наших исследованиях именно электрооптический эффект приводит к основным изменениям двулучепреломления вблизи доменных стенок.

Зависимость результатов экспериментов от процедуры обработки поверхности образца, о которой говорилось выше, связана, очевидно, с влиянием этой обработки на структуру и химический состав приповерхностного слоя кристалла и, в частности, на его проводимость.

Таким образом, проведенные исследования демонстрируют возможность создания зарядового рельефа в приповерхностной области кристаллов ниобата лития с помощью подвижного иглообразного электрода. Локальное внедрение заряда в ниобат лития может быть проведено как за счет инжекции носителей заряда, так и посредством перемещения заряженных доменных стенок. В первом случае в образец вводятся только свободные носители заряда, а во втором — в образце осуществляется еще и структурная перестройка (переполаризация) кристаллической решетки.

Из полученных результатов следует, что благодаря большой величине электрооптических коэффициентов в ниобате лития удается визуализировать не только сегнетоэлектрическое доменообразование, но и инжекцию носителей заряда в диэлектрик.

Проводимые исследования демонстрируют принципиальную возможность зарядовой записи в диэлектрике информации с достаточно высокой плотностью. Разработанная методика формирования зарядовых структур может быть использована для создания локальных неоднородностей в диэлектрических кристаллах и пленках при исследовании распространения в этих средах электромагнитных и акустических волн.

## Список литературы

- [1] М.П. Петров, С.И. Степанов, А.В. Хоменко. Фоточувствительные электрооптические среды в голографии и оптической обработке. Наука, Л. (1983). 269 с.
- [2] М. Ламперт, П. Марк. Инжекционные токи в твердых телах. Мир, М. (1973). 416 с. (M.A. Lampert. P. Mark. Current injection in solids. Academic Press. N.Y. London (1970).)
- [3] С.О. Фрегатов, А.Б. Шерман. Письма в ЖТФ **23**, *11*, 54 (1997).
- [4] С.О. Фрегатов, А.Б. Шерман. Письма в ЖТФ **24**, *6*, 52 (1998).