

05;11;12

Переключаемая часть поляризации сегнетокерамики при импульсной эмиссии электронов

© В.Н. Иванов, Л.М. Рабкин

Ростовский государственный университет,
344090 Ростов-на-Дону, Россия
E-mail: ivanov@phys.rnd.runnet.ru

(Поступило в Редакцию 31 января 2000 г.)

Переключаемая часть поляризации сегнетокерамики, находящейся в импульсном электрическом поле, найдена с использованием модели Прейзаха. Предложен способ определения параметров этой модели из экспериментальной петли гистерезиса и проведен расчет параметров для состава PLZT-9/65/35. Установлено, что пороговая напряженность электрического поля для переключаемой части поляризации близка к пороговой напряженности электронной эмиссии с этой керамики.

Введение

Электронная эмиссия с поверхности сегнетоэлектрика является предметом исследований в течение последних двух десятилетий. Наибольшие плотности тока, представляющие прикладной интерес, были достигнуты с образцов из керамики PLZT с содержанием компонентов, соответствующим близости к границам раздела фаз [1]. Такая интенсивная эмиссия наблюдается при воздействии импульсов электрического поля с амплитудой, значительно превышающей коэрцитивное поле, и длительностью порядка десятков наносекунд при невысокой частоте повторения (обычно не более 1 kHz).

Можно считать установленным [2], что основную роль в появлении эмиссии играет изменение ориентации вектора спонтанной поляризации. Однако для глубокого понимания механизма эмиссии требуется исследование распределения потенциала в сегнетоэлектрическом образце вблизи его поверхности, появляющегося в процессе реполяризации образца. Проведенные в работах [1,2] расчеты потенциала не учитывают возникающие при реполяризации объемные заряды. Эти заряды являются следствием неоднородности и электрического поля и поляризации, вызванной сложной геометрией одного из нанесенных на поверхности образца электродов, имеющего вид решетки из лент [1–4]. Сложность еще и в том, что объемные и поверхностные заряды, возникающие в процессе переключения спонтанной поляризации, со временем экранируются свободными зарядами, всегда присутствующими в сегнетоэлектрике.

Очевидно, самосогласованный расчет потенциала сегнетоэлектрика в импульсном неоднородном внешнем поле должен начинаться с установления связи между электрическим полем и поляризацией. Именно установлению такой связи посвящена настоящая работа.

Процессы реполяризации поликристаллической керамики сложны из-за ее неоднородности. Кроме того, интересующие нас составы PLZT близки к фазовым границам и имеют размытый фазовый переход. Поэтому можно надеяться правильно описать реполяризацию

этих составов только на основе некоторой феноменологической модели с численными значениями параметров, определяемыми из эксперимента.

Термодинамический подход, хорошо передающий качественную картину фазовых переходов сложной природы, не дает достаточно точных количественных соотношений между параметрами, характеризующими поляризацию сегнетоэлектрика. Поэтому для описания реполяризации сегнетокерамики в настоящей работе применяется статистический подход, предложенный Прейзахом [5] для ферромагнетиков и использованный для сегнетокерамики в работах [6,7].

Модель Прейзаха поляризации сегнетокерамики

В этой модели [6] принимается, что все домены имеют одинаковую спонтанную поляризацию P_s и в направлении поляризуемого поля ориентирована в среднем $1/3$ всех доменов. Каждый домен обладает своей величиной коэрцитивного поля $E_c > 0$ и имеет прямоугольную петлю гистерезиса. Влияние окружения домена описывается эффективным внутренним полем E_i , которое может как усиливать действие внешнего поляризуемого поля, так и ослаблять его.

В деполаризованном состоянии в условиях теплового равновесия векторы спонтанной поляризации доменов ориентированы вдоль внутреннего поля E_i , наложение внешнего поля E вызывает реполяризацию доменов, для которых $E \geq E_i + E_c$. Это приводит к зависимости ориентационной поляризации P_R от поля E для основной ветви петли гистерезиса в виде

$$P_R(E) = (2P_s/3) \int_0^E \int_0^{E-E_c} f(E_c, E_i) dE_c dE_i, \quad (1)$$

где $f(E_c, E_i)$ — функция распределения доменов по коэрцитивным и внутренним полям, нормированная усло-

вием

$$\int_0^{\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} f(E_c, E_i) dE_c dE_i = 1. \quad (2)$$

Если к керамике приложено переменное электрическое поле с амплитудой E_m , то наибольшая величина поляризации составляет

$$P_m = P_R(E_m), \quad (3)$$

а после возвращения поля к нулевому значению остаточная поляризация оказывается равной

$$P_r = P_m - P_b, \quad (4)$$

где

$$P_b(E) = (2P_s/3) \int_0^{E_m/2} \int_{E_c}^{E_m-E_c} f(E_c, E_i) dE_c dE_i. \quad (5)$$

В случае поля с амплитудой E_m , периодически меняющегося по направлению, нисходящей ветви петли гистерезиса отвечает зависимость поляризации

$$P_d(E) = P_m - (2P_s/3) \int_0^{(E_m-E)/2} \int_{E+E_c}^{E_m-E_c} f(E_c, E_i) dE_c dE_i, \quad (6)$$

восходящей ветви — зависимость поляризации

$$P_a(E) = -P_m + (2P_s/3) \int_0^{(E_m+E)/2} \int_{E_c-E_m}^{E-E_c} f(E_c, E_i) dE_c dE_i, \quad (7)$$

где E — мгновенное значение переменного электрического поля.

Неэкранируемая часть поляризационных зарядов

К керамическому образцу, являющемуся эмиттером электронов, приложено напряжение в виде последовательности однополярных импульсов малой длительности и с большим периодом повторения. Поляризация в течение импульса равна P_m , в течение остального длительного времени она равна P_r . Можно предположить, что поляризационные заряды, вызванные остаточной поляризацией P_r , окажутся со временем скомпенсированы свободными зарядами керамики.

Вызванные переключаемой частью поляризации $P_b = P_m - P_r$ поляризационные заряды останутся нескомпенсированными по крайней мере в течение короткого времени после прохождения фронта импульса. Именно они определяют распределение потенциала в керамическом образце во время импульса тока электронной эмиссии.

Таким образом, расчет распределения потенциала в образце требует вычисления переключаемой части поляризации P_b , для чего необходимо установить вид функции распределения $f(E_c, E_i)$.

Выбор вида функции распределения

Вектор поляризации керамики образуется в результате усреднения большого числа малых вкладов отдельных доменов. Коэрцитивное поле домена определяется его структурой и граничными условиями, внутреннее поле — взаимодействием домена с его окружением, и эти поля следует считать в общем случае коррелированными случайными величинами. Поэтому функцию распределения представим двумерным нормальным распределением

$$f(E_c, E_i) = \frac{1}{2\pi\sigma_c\sigma_i(1-r^2)^{1/2}} \times \exp\left\{-\frac{(E_c-E_{cm})^2\sigma_c^{-2}-2r(E_c-E_{cm})E_i\sigma_c^{-1}\sigma_i^{-1}+E_i^2\sigma_i^{-2}}{2(1-r^2)}\right\}, \quad (8)$$

где σ_c^2 и σ_i^2 — соответственно дисперсия коэрцитивного и внутреннего поля, r — коэффициент корреляции этих полей, E_{cm} — среднее значение коэрцитивного поля.

Такое представление функции распределения является приближенным. Отрицательные значения коэрцитивного поля лишены физического смысла, что отражено в условиях нормировки (2). Но с учетом свойств представляющей нормальное распределение функции Гаусса можно считать допустимым использование функции распределения (8) при $\sigma_c < E_{cm}/3$. Параметры функции распределения P_s , E_{cm} , σ_c , σ_i , r следует определять из опыта, в частности, воспользоваться петлей гистерезиса.

Определение параметров функции распределения из экспериментальной петли гистерезиса

При использовании петли гистерезиса следует учитывать, что представленная ею поляризация кроме ориентационной части включает еще и связанную с квазиупругими смещениями электронных оболочек и ионов линейную часть $k\varepsilon_0 E$, где k — коэффициент диэлектрической восприимчивости.

Необходимые для определения величин k , P_s , E_{cm} , σ_c , σ_i , r шесть уравнений получаем, рассмотрев значения электрического поля и поляризации в некоторых характерных точках петли гистерезиса и наклоны петли в этих точках. Далее для определенности рассматриваем нисходящую ветвь петли, представляемую выражением (6).

В вершине петли гистерезиса при электрическом поле E_m максимальное экспериментальное значение поляризации P_{me} связано с P_m из (3) равенством

$$P_{me} = P_m + k\varepsilon_0 E_m. \quad (9)$$

При электрическом поле $E = 0$ экспериментальное значение остаточной поляризации P_{re} в соответствии с

соотношением (6) удовлетворяет равенству

$$P_{re} = P_m - (2P_s/3) \int_0^{E_m/2} \int_{E_c}^{E_m-E_c} f(E_c, E_i) dE_c E_i. \quad (10)$$

Аналогично абсолютная величина экспериментально-го коэрцитивного поля E_{ce} при нулевой экспериментальной поляризации удовлетворяет равенству

$$P_m - (2P_s/3) \int_0^{(E_m+E_{ce})/2} \int_{E_c-E_{ce}}^{E_m-E_{ce}} f(E_c, E_i) dE_c dE_i - k\varepsilon_0 E = 0. \quad (11)$$

Наклон экспериментальной петли гистерезиса в ее вершине K_m связан с находимым из соотношений (3) и (1) производной

$$dP_m/dE_m = (2P_s/3) \int_0^{E_m} f(E_c, E_m - E_c) dE_c \quad (12)$$

равенством

$$K_m = dP_m/dE_m + k\varepsilon_0. \quad (13)$$

Аналогично наклоны экспериментальной петли гистерезиса K_0 в точке $E = 0$ и K_c в точке $E = -E_{ce}$ связаны с взятыми в этих точках производными от соотношения (6)

$$dP_d/dE|_{E=0} = (2P_s/3) \int_0^{E_m/2} f(E_c, E_c) dE_c, \quad (14)$$

$$dP_d/dE|_{E=-E_{ce}} = (2P_s/3) \int_0^{(E_m+E_{ce})/2} f(E_c, E_c - E_{ce}) dE_c \quad (15)$$

равенствами

$$K_0 = dP_d/dE|_{E=0} + k\varepsilon_0, \quad (16)$$

$$K_c = dP_d/dE|_{E=-E_{ce}} + k\varepsilon_0. \quad (17)$$

По определенным из экспериментальной петли гистерезиса величинам E_m , P_{me} , P_{re} , E_{ce} , K_m , K_0 , K_c система шести уравнений (9), (10), (11), (13), (15), (17) с учетом равенств (1), (3), (12), (14), (16) позволяет численной минимизацией невязок найти восприимчивость k и пять параметров функции распределения P_s , E_{cm} , σ_c , σ_i , r , при которых расчетная петля гистерезиса наилучшим образом аппроксимирует экспериментальную.

Пример расчета переключаемой части поляризации

Были проведены расчеты переключаемой части поляризации P_b , определяемой выражением (5), с использованием экспериментальных петель гистерезиса,

$t, ^\circ\text{C}$	$P_s, \mu\text{C}/\text{cm}^2$	$E_{cm}, \text{kV}/\text{cm}$	$\sigma_i, \text{kV}/\text{cm}$
-20	98	12.6	6.1
+20	74	3.73	11.4
+50	69	2.60	23.0

приведенных в работе [8] для сегнетокерамики состава PLZT-9/65/35 в интервале температур от -20 до $+70^\circ\text{C}$.

Вычисления показали, что при температуре, не слишком близкой к температуре фазового перехода, наилучшее приближение соответствует значению параметра дисперсии коэрцитивного поля σ_c , много меньшему, чем среднее коэрцитивное поле E_{cm} и параметр дисперсии внутреннего поля σ_i . Это позволяет для расчета переключаемой поляризации P_b использовать более простую аппроксимацию функции распределения

$$f(E_c, E_i) = (2\pi)^{-1/2} \sigma_i^{-1} \exp\{-E_i^2/(2\sigma_i^2)\} \delta(E_c - E_{cm}) \quad (18)$$

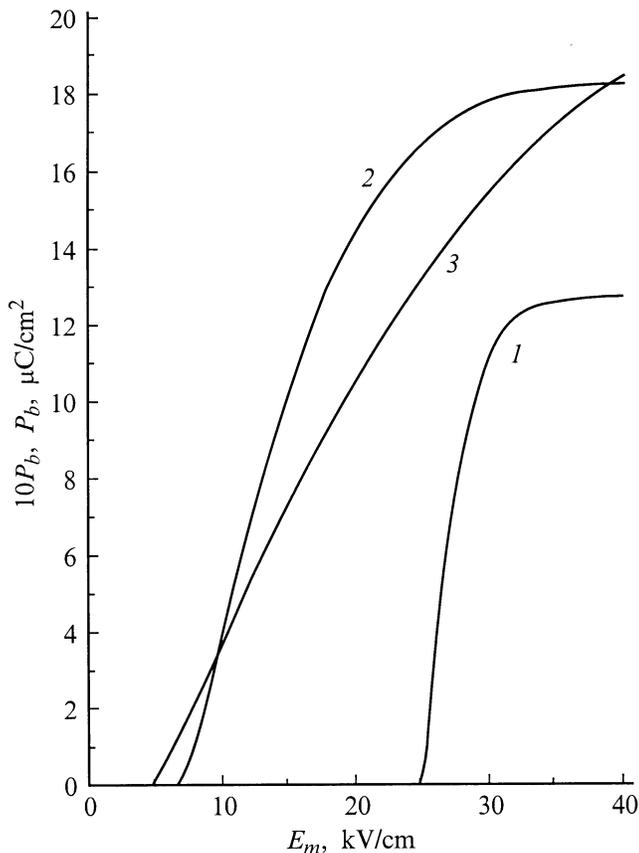
с использованием дельта-функции Дирака δ . В результате получаем следующую зависимость переключаемой поляризации P_b от амплитуды E_m импульса напряженности электрического поля

$$P_b = \begin{cases} 0, & E_m < 2E_{cm}, \\ (P_s/3) \{ \operatorname{erf}[(E_m - E_{cm})/(2^{1/2}\sigma_i)] - \operatorname{erf}[E_{cm}/(2^{1/2}\sigma_i)] \}, & E_m > 2E_{cm}. \end{cases} \quad (19)$$

В таблице приведены результаты расчета параметров функции распределения, определяющих переключаемую поляризацию, для трех температур. Видно, что с ростом температуры уменьшается спонтанная поляризация P_s , среднее коэрцитивное поле E_{cm} и растет параметр дисперсии внутреннего поля σ_i . При температуре $+70^\circ\text{C}$, близкой к температуре исчезновения спонтанной поляризации [9], предлагаемая в настоящей работе модель перестает быть применимой, так как расчет дает $\sigma_c > E_{cm}$.

На рисунке приведены результаты расчета переключаемой части поляризации P_b от амплитуды E_m импульса напряженности электрического поля. Из этих графиков следует, что при температуре -20°C , когда петля гистерезиса сегнетокерамики близка к прямоугольной, переключаемая поляризация много меньше, чем при температуре $+20$ или $+50^\circ\text{C}$, когда в петлях преобладают наклонные участки. На основе выражения (19) это можно объяснить тем, что при температуре -20°C величина $2E_{cm}$ соизмерима с наибольшей достижимой в эксперименте напряженностью E_m и мал параметр дисперсии σ_i , а при температурах $+20$ и $+50^\circ\text{C}$ мал E_{cm} и велико σ_i .

На графиках также видно насыщение переключаемой поляризации при $E_m - E_{cm} \gg \sigma_i$. Переключаемая поляризация отсутствует при $E_m < 2E_{cm}$, что означает существование у нее пороговой напряженности электрического поля. В работе [9] установлено наличие порогового



Зависимость переключаемой части поляризации P_b от амплитуды E_m импульса напряженности электрического поля: 1 — $10P_b$, $t = -20^\circ\text{C}$; 2 — P_b , $t = +20^\circ\text{C}$; 3 — P_b , $t = +50^\circ\text{C}$.

электрического поля для электронной эмиссии, возникающей под действием импульсного электрического поля. Этот порог для керамики рассматриваемого состава равен приблизительно 6 kV/cm , что хорошо соответствует пороговому полю для переключаемой поляризации при температуре, близкой к комнатной. Поэтому естественно предположить, что переключаемая поляризация, связанные с ней поляризационные заряды и создаваемые этими зарядами поля участвуют в механизме эмиссии электронов.

Выводы

1. Для выяснения механизма эмиссии электронов с поверхности сегнетокерамики, возникающей под действием импульсного электрического поля, необходим расчет потенциала в образце с учетом влияния поляризационных зарядов.

2. Предполагается, что только переключаемая на фронте короткого импульса часть поляризации создает поляризационные заряды, которые не успевают экранироваться за время эмиссии.

3. Предложено применять для вычисления переключаемой поляризации модель Преайзаха.

4. Указан способ определения параметров модели Преайзаха из экспериментальных петель гистерезиса сегнетокерамики.

5. Рассчитаны параметры модели Преайзаха и зависимость переключаемой поляризации от электрического поля для сегнетокерамики состава PLZR-9/65/35 при нескольких температурах.

6. Для переключаемой поляризации установлено наличие пороговой напряженности поля, которая близка к пороговой напряженности для эмиссии электронов. Это согласуется с предположением о существенной роли электрического поля поляризационных зарядов, связанных с переключаемой поляризацией, в механизме эмиссии электронов с сегнетокерамики.

Использованная в настоящей работе модель Преайзаха внешне выглядит как формальный математический способ аппроксимации экспериментальной петли гистерезиса суммой элементарных прямоугольных петель. Но она имеет глубокую физическую основу, и это подтверждается, в частности, тем, что, согласно работам [1,10], наблюдаемый ток эмиссии состоит из наложения большого количества коротких всплесков, связанных с перерождением реальных малых областей сегнетокерамики.

Разработанный метод расчета переключаемой части поляризации сегнетокерамики предполагается в дальнейшем использовать для исследования поляризационных зарядов и их влияния на распределение потенциала в эмитирующем сегнетокерамическом образце.

Настоящая работа выполнена в соответствии с проектом № 5-82 программы "Интеграция".

Список литературы

- [1] Cundel H. // Integrated Ferroelectrics. 1992. Vol. 2. P. 207–220.
- [2] Zhang W., Huebner W. // Ferroelectrics. 1999. Vol. 221. P. 199–207.
- [3] Rosenman G., Shur D., Garb Kh. et al. // J. Appl. Phys. 1997. Vol. 82. P. 772–778.
- [4] Рабкин Л.М., Иванов В.Н. // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 24. Вып. 14. С. 54–57.
- [5] Preisach F. // Zs. f. Phys. 1935. Bd 94. S. 277.
- [6] Турик А.В. // ФТТ. 1963. Т. 5. Вып. 4. С. 1213–1215.
- [7] Турик А.В. // ФТТ. 1963. Т. 5. Вып. 10. С. 2922–2925.
- [8] Carl K., Geisan K. // Proc. IEEE. 1973. Vol. 61. N 7. P. 967–974.
- [9] Gundel H., Handrek J., Riege H. и др. // Ferroelectrics. 1990. Vol. 110. P. 183–192.
- [10] Gundel H., Handrek J., Riege H. // J. Appl. Phys. 1991. Vol. 69. P. 975–982.