

Токи локальной переполаризации и инжекции носителей заряда при сканировании поверхности LiNbO_3 подвижным иглообразным электродом

© В.Г. Залесский, А.Б. Шерман, С.О. Фрегатов

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

E-mail: asherman@pop.ioffe.rssi.ru

E-mail: slava@nsh.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 8 февраля 2001 г.)

Разработана методика записи и считывания потенциального рельефа в приповерхностной области монокристаллов ниобата лития Z -среза конгруэнтного состава при сканировании их поверхности иглообразным электродом. В процессе сканирования измерены токи инжекции и переключения поляризации. Обнаружено, что характерное время формирования потенциального рельефа при инжекции носителей заряда в приповерхностную область кристалла составляет по порядку величины 10^{-1} с. Процесс переключения поляризации и образование связанного с ним потенциального рельефа протекают на порядок быстрее. Показано, что характерное расстояние, на котором происходит существенное изменение записанного потенциального рельефа, при точечной записи равно по порядку величины $10^2 \mu\text{m}$. Обнаружено, что ток инжекции носителей заряда, совпадающий с направлением $+Z$ меньше, чем ток в противоположном направлении.

Работа выполнена при поддержке Фонда Министерства науки РФ (проект № 99-2041).

Контакт металл–диэлектрик при достаточно большой разности потенциалов служит источником свободных носителей заряда, инжектируемых в диэлектрик [1]. Инжекционная эффективность контакта заметно возрастает при использовании электродов с микронными и субмикронными размерами, когда напряженность поля в приконтактной области велика даже при относительно небольших напряжениях. Инжекция заряда в диэлектрик сопровождается процессами дрейфа, диффузии и захвата инжектированных носителей ловушками кристалла. В результате в кристалле создается объемный заряд определенной пространственной конфигурации. Если в качестве диэлектрика используется сегнетоэлектрический кристалл и напряженность поля вблизи электрода достаточна для локальной переполаризации кристалла [2,3], то помимо инжектированных зарядов в образование объемного заряда вносят вклад поверхностные заряды и заряды доменных стенок [2–6]. Ранее внедрение заряда в кристаллы LiNbO_3 с помощью точечного электрода мы изучали оптическим методом [2,3]. В настоящей работе эти исследования продолжены с использованием метода измерения малых токов, протекающих через этот электрод (рис. 1). Используемая ранее экспериментальная установка [2,3] была дополнена устройством для сканирования поверхности кристалла иглообразным электродом с заданной скоростью. Для измерения малых токов использовался электрометр В7-30 с чувствительностью 10^{-15} А и полосой частот 0–200 Гц. Электрометр был включен последовательно с источником высокого напряжения, задающим напряжение между подвижным острием и вторым (заземленным) электродом, зафиксированным на тыльной поверхности образца. Для

предотвращения электрических пробоев при проведении экспериментов образцы помещались в кювету с маслом. Представлены результаты для $+Z$ -среза конгруэнтного монокристалла.

Сканирование поверхности кристалла иглообразным электродом с заданным потенциалом приводило к формированию потенциального рельефа в приповерхностной области кристалла. Одновременно с записью потенциального рельефа измерялся ток через подвижный электрод. Измерение тока использовалось также для считывания поверхностного распределения потенциала при повторном сканировании. При этом острие электрода было соединено с землей через электрометр.

Контрольные эксперименты показали, что в случае непосредственного контакта иглообразного электрода с поверхностью кристалла основной вклад в измеря-

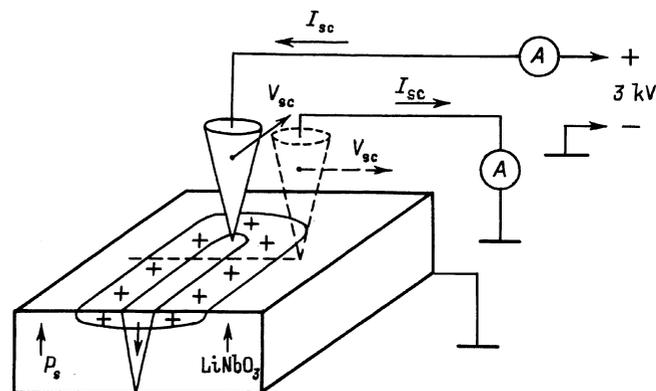


Рис. 1. Схема эксперимента для записи и считывания потенциального рельефа иглообразным электродом.

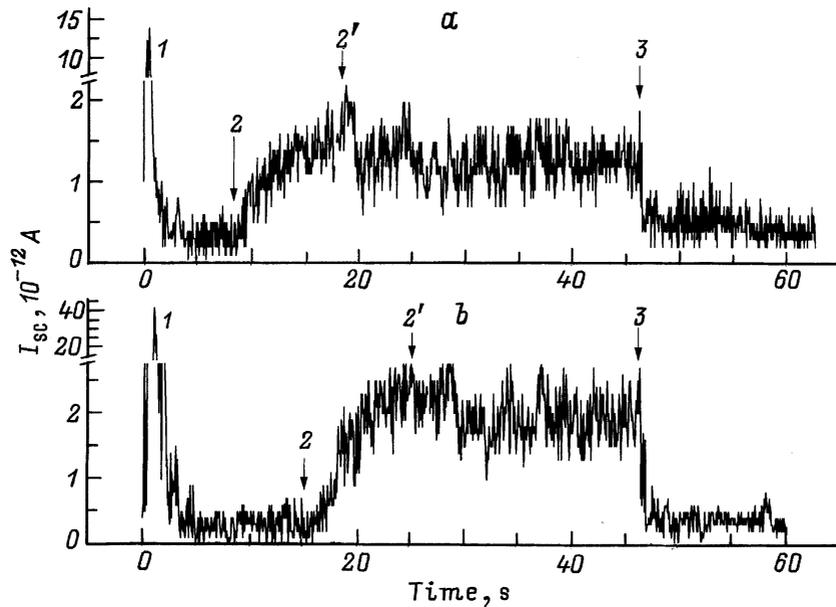


Рис. 2. Временная зависимость тока сканирования поверхности кристалла LiNbO_3 при записи потенциального рельефа. Потенциал иглообразного электрода составляет -0.6 (а) и $+0.6$ кВ (б). Цифрами обозначены моменты касания поверхности кристалла острием электрода (1), начала движения электрода (2) и остановки электрода (3).

емую величину тока вносит ток через точечный контакт электрод–кристалл. Вследствие этого шунтирующим влиянием масла в ходе экспериментов можно было пренебречь.

В ходе записи и считывания проводилось оптическое наблюдение поверхности кристаллов, которое позволяло фиксировать локальное изменение двулучепреломления, свидетельствующее о локальном переключении поляризации [3]. Абсолютная величина порогового потенциала подвижного электрода, при которой наблюдалось локальное переключение поляризации в исследованных кристаллах, составляла 1 кВ. При исследовании процессов формирования потенциального рельефа в допороговом режиме (без переключения поляризации) потенциал иглообразного электрода устанавливался по абсолютной величине равным 0.6 кВ, а в надпороговом (с переключением поляризации) — 3 кВ.

Процесс записи осуществлялся следующим образом. Игольчатый электрод приводился в соприкосновение с поверхностью кристалла (точка 1 на рис. 2 и 4) и оставался неподвижным вплоть до заданного момента времени (точка 2). С момента времени 2 электрод начинал прямолинейное перемещение по поверхности кристалла со скоростью $16 \mu\text{m/s}$. В точке 3 электрод останавливался.

На рис. 2 показаны зависимости тока сканирования в допороговом режиме. Кривые $I_{sc}(t)$ для разных полярностей электрода подобны, хотя абсолютная величина тока для них несколько отличается: в направлении $+Z$ ток меньше, чем в направлении $-Z$. После прикосновения острия электрода к кристаллу наблюдается резкий

рост тока. Затем ток уменьшается, причем его падение происходит более плавно (постоянные времени спада для разных полярностей электрода τ_+ , $\tau_- \approx 0.5$ s). Далее при движении электрода в течение первых 10–15 s (интервал между точками 2 и 2') ток увеличивается до значения, которое в дальнейшем не меняется. Наблюдения поверхности кристалла в поляризационный микроскоп в допороговом режиме не выявляют в нем каких-либо оптических изменений.

При анализе результатов экспериментов необходимо учитывать, что величина электрического тока через острие определяется разностью потенциалов между электродом и диэлектриком в области их соприкосновения. На эту разность потенциалов влияет не только напряжение, приложенное к металлическим электродам, но и потенциал зарядового рельефа, существующий в кристалле в силу определенной предыстории (например, потенциал, созданный в кристалле при записи).

После касания поверхности кристалла подвижным электродом в его приповерхностную область инжектируются неравновесные носители заряда [1,3]. В результате их дрейфа в электрическом поле точечного электрода и последующего захвата примесными центрами (например, кислородными вакансиями, неконтролируемыми примесями железа, хрома и т. д. [7–9]) в кристалле вблизи острия формируется пространственный рельеф связанного заряда $\sigma(\mathbf{r})$. Этот заряд создает соответствующее распределение потенциала в приповерхностной области кристалла $\varphi(\mathbf{r})$. По мере накопления заряда разность потенциалов между иглой и поверхностью уменьшается. Как следствие этого, в интервале между

точками 1 и 2 (рис. 2, *a, b*) наблюдается уменьшение тока по закону, близкому к экспоненциальному.

Естественно ожидать, что после достижения равновесия абсолютная величина потенциала $\varphi(\mathbf{r})$ по мере удаления от точки касания убывает монотонно. Поэтому при начале движения электрода в точке 2 увеличивающаяся разность потенциалов между поверхностью кристалла и перемещающимся по ней электродом должна приводить к росту тока. Именно этим объясняется наблюдаемое возрастание тока на начальном этапе перемещения электрода (интервал 2–2'). Положение электрода, при котором ток перестает расти (точка 2'), можно условно назвать границей области резкого изменения $\varphi(\mathbf{r})$. С учетом скорости ($V = 16 \mu\text{m/s}$) и времени ($t \approx 10\text{s}$) движения иглы оценка расстояния до этой границы дает величину $\rho \approx 160 \mu\text{m}$. Неизменность тока между моментами времени 2' и 3 указывает на то, что $\varphi(\mathbf{r})$ слабо меняется при $r > \rho$. Спад тока, наблюдающийся после остановки электрода, обусловлен, очевидно, насыщением приповерхностной области кристалла инжектируемым зарядом.

Выяснение причины разной абсолютной величины тока через подвижный электрод при различной его полярности (рис. 2, *a, b*) требует дальнейших исследований. Подобная зависимость величины тока от полярности инжектирующего электрода может быть связана с различием параметров носителей заряда разного знака, инжектируемых в кристалл, с асимметрией проводимости контакта электрода с поляризованным сегнетоэлектриком, с особенностями протекания тока в средах без центра инверсии [7,9].

С целью анализа сформированного при записи распределения потенциала выполнялась операция считывания. Для этого, как указывалось выше, проводилось повторное сканирование поверхности заземленным электродом поперек линии записи. Пересечение этой линии произошло в том месте, где ток при движении электрода на рис. 2 выходил на стационарное значение. Сканирование при считывании проводилось с той же скоростью, что и при записи.

Кривые тока $I_{sc}(\mathbf{r})$, полученные в ходе такого однократного сканирования потенциального рельефа, записанного в допороговом режиме, представлены на рис. 3, *a, b*. Эти кривые подобны друг другу, меняется только знак тока. В точке пересечения с линией записи эти кривые имеют максимум, указывающий на положение максимума записанного ранее потенциала $\varphi(\mathbf{r})$. Чем дальше находится подвижный электрод от линии записи, тем меньше измеряемый ток. На расстоянии, близком к определенному выше значению $\rho \approx 160 \mu\text{m}$, он снижается до уровня шумов.

Результаты, полученные при записи в надпороговом режиме, представлены на рис. 4. Кривая $I_{sc}(t)$, снятая при отрицательной полярности сканирующего электрода (рис. 4, *a*), в основном сохраняет подобие с кривыми, показанными на рис. 2. Амплитуда всплеска тока при начальном прикосновении увеличивалась пропорциональ-

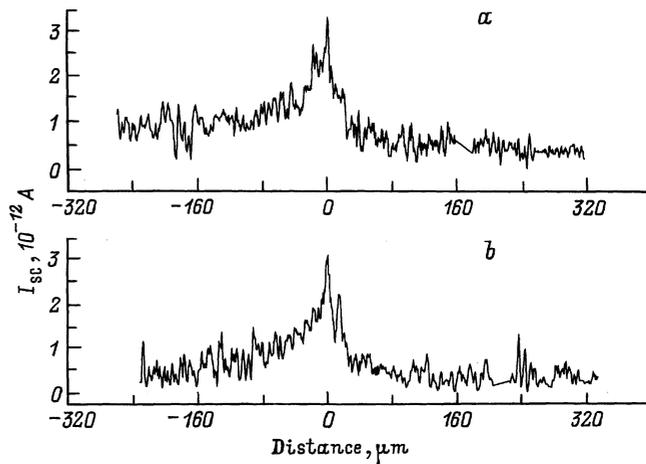


Рис. 3. Зависимость тока сканирования поверхности кристалла LiNbO_3 от расстояния при считывании потенциального рельефа, записанного при потенциале иглообразного электрода $+0.6$ (*a*) и -0.6 *kV* (*b*).

но потенциалу иглы. Постоянная времени затухания этого тока сохраняет тот же порядок величины ($\tau \approx 0.3\text{s}$). Стационарное значение тока (между точками 2' и 3), которое монотонно достигается при движении иглы в точке 2', возросло пропорционально потенциалу электрода. Радиус области резкого изменения потенциала ρ в этом случае, так же как и при низком напряжении между электродами, равен приблизительно $160 \mu\text{m}$.

При положительной полярности электрода в надпороговом режиме наблюдается существенная модификация кривой $I_{sc}(t)$ (рис. 4, *b*). Амплитуда начального всплеска тока (точка 1) заметно увеличивается, а постоянная времени его затухания уменьшается до $\tau_+ \approx 0.05\text{s}$. В начале движения острия электрода (точка 2) ток резко увеличивается до значения, заметно превышающего величину стационарного тока на рис. 4, *a*. Заметно увеличивается и шумоподобная составляющая сигнала. Одновременное наблюдение картины двулучепреломления в кристалле свидетельствует о локальном переключении поляризации в точке начального соприкосновения иглы с кристаллом, а также вдоль траектории ее перемещения. Таким образом, отмеченные особенности кривой $I_{sc}(t)$ на рис. 4, *b* обусловлены процессами формирования локальной доменной структуры в кристалле.

Кривые считывания потенциального рельефа, записанного острием с потенциалом $+3\text{kV}$ (рис. 5, *a*), свидетельствуют о том, что условная граница области резкого изменения потенциала, так же как и при потенциале записи $+0.6\text{kV}$, располагается на расстоянии около $160 \mu\text{m}$ от линии записи.

Особенностью кривой считывания потенциального рельефа, созданного острием отрицательной полярности в надпороговом режиме (рис. 5, *b*), являются интенсивные всплески тока, подобные всплескам тока при записи доменной структуры, показанным на рис. 4, *b*. Эти

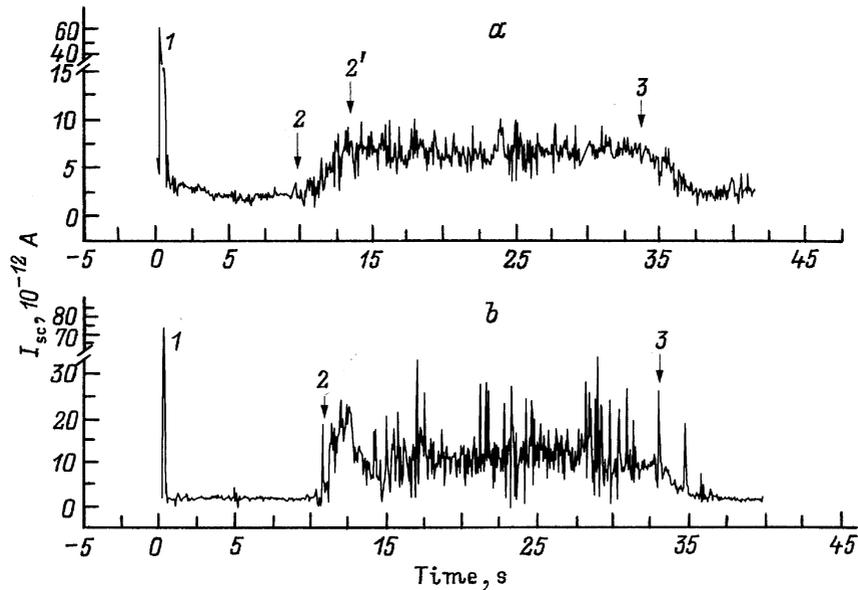


Рис. 4. Временная зависимость тока сканирования поверхности кристалла LiNbO_3 при записи потенциального рельефа. Потенциал иглообразного электрода составляет -3 (a) и $+3$ kV (b). Обозначения те же, что и на рис. 2.

всплески возникают при движении острия вблизи линии записи. Как показывают оптические наблюдения, возникновение указанных всплесков тока сопровождается образованием квазипериодической иглообразной доменной структуры в этой области кристалла [3]. Следовательно, разность потенциалов между считывающим заземленным острием и поверхностью с ранее записанным отрицательным потенциалом превышает пороговое значение. Длина образующейся доменной структуры определяется расстоянием между точками, расположенными по обе

стороны от записанной линии, в которых напряжение между считывающим электродом и поверхностью достигает порогового значения. Из рис. 5, b следует, что длина равна приблизительно $80 \mu\text{m}$.

Как следует из эксперимента, все кривые отличаются сравнительно большим уровнем шума. Было установлено, что отмеченный эффект связан с процессами, протекающими непосредственно в самом исследуемом кристалле, а не с использовавшейся методикой измерения малых токов при высоких напряжениях. При движении иглы уровень шума несколько повышен по сравнению с уровнем шума при неподвижной игле. Особенно заметно этот эффект проявляется в надпороговом режиме. Обращает на себя внимание близость частотных характеристик шума во всех рассматриваемых случаях. Природа шума требует специального исследования. Она может быть связана с ростовой неоднородностью кристаллов, с качеством их поверхности, с возможной нестабильностью контакта.

Следует отметить, что предварительные исследования токов инжекции и переключения поляризации были проведены также на кристаллах $-Z$ -среза. Было обнаружено, что, как и в случае кристаллов $+Z$ -среза, величина инжекционного тока в направлении $+Z$ меньше, чем в противоположном направлении. В надпороговом режиме токи при переключении спонтанной поляризации в образцах $-Z$ и $+Z$ -срезов совпадали по порядку величины. Наконец, вид всех кривых записи и считывания потенциального рельефа на поверхности $-Z$ -среза был подобен виду соответствующих кривых, полученных при исследовании поверхности кристаллов $+Z$ -среза.

Таким образом, представленные экспериментальные результаты позволяют составить качественные пред-

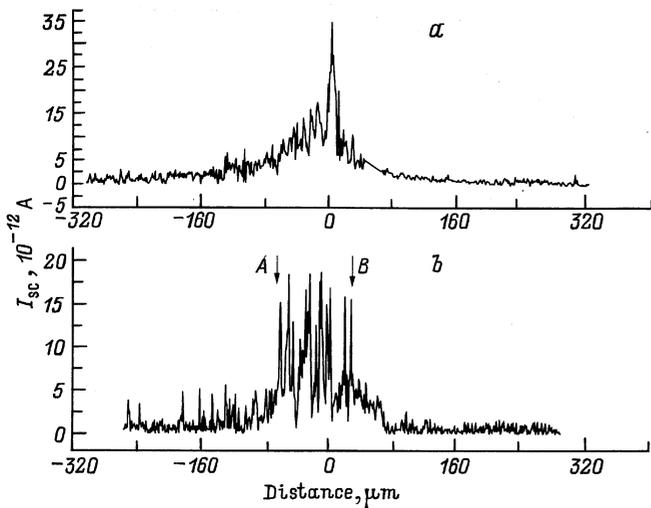


Рис. 5. Зависимость тока сканирования поверхности кристалла LiNbO_3 от расстояния при считывании потенциального рельефа, записанного при потенциале иглообразного электрода $+3$ (a) и -3 kV (b). Стрелками показаны начало (A) и конец (B) образования доменной структуры, при движении электрода.

ставления о формировании и характерном распределении потенциального рельефа в приповерхностной области кристалла: а) время образования потенциального рельефа в результате инъекции носителей заряда (без переключения спонтанной поляризации) в приповерхностную область монокристалла LiNbO_3 составляет 0.3–0.5 с; б) при локальном переключении спонтанной поляризации время образования потенциального рельефа в приконтактной области кристалла сокращается на порядок (до 0.05 с); в) потенциальный рельеф, образованный в результате точечного касания иглообразным электродом поверхности кристаллов LiNbO_3 , имеет в точке касания максимальное значение и плавно спадает на характерном расстоянии порядка $10^2 \mu\text{m}$; г) при инъекции носителей заряда в кристалл абсолютная величина тока зависит от взаимной ориентации направлений тока и оси Z : ток инъекции в направлении $+Z$ меньше, чем в направлении $-Z$.

Список литературы

- [1] М. Ламперт, П. Марк. Инжекционные токи в твердых телах. Мир, М. (1973). 416 с.
- [2] С.О. Фрегатов, А.Б. Шерман. Письма в ЖТФ **24**, 6, 52 (1998).
- [3] С.О. Фрегатов, А.Б. Шерман. ФТТ **41**, 3, 510 (1999).
- [4] А.К. Tagantsev, I.A. Stolichnov. Appl. Phys. Lett. **74**, 9, 1326 (1999).
- [5] А.В. Голенищев-Кутузов, В.А. Голенищев-Кутузов, Р.И. Калимуллин. УФН **170**, 7, 697 (2000).
- [6] В.Я. Шур, Е.Д. Румянцев, Р.Г. Бачко, Г.Д. Миллер, М.М. Фейер, Р.Л. Байер. ФТТ **41**, 10, 1831 (1999).
- [7] М. Лайнс, А. Гласс. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. Мир, М. (1981). 736 с.
- [8] Ю.С. Кузьминов. Электрооптический и нелинейнооптический кристалл ниобат лития. Наука, М. (1987). 264 с.
- [9] Б.И. Стурман, В.М. Фридкин. Фотогальванический эффект в средах без центра симметрии и родственные явления. Наука, М. (1992). 208 с.