

©1995

ОСОБЕННОСТИ ИМПУЛЬСНОЙ ПЕРЕПОЛЯРИЗАЦИИ ОБЛУЧЕННЫХ КРИСТАЛЛОВ ТРИГЛИЦИНСУЛЬФАТА

Л.Н.Камышева, О.М.Голицына, С.Н.Дрождин,
А.Д.Масликов, А.Б.Барбашина

Воронежский государственный университет
Поступила в Редакцию 24 июня 1994 г.

Исследования импульсной переполяризации кристаллов триглицинсульфата (ТГС) как номинально чистых, так и легированных (примеси ионов Cr^{3+} и молекул L , α -аланина) [1–3] показали, что температурные зависимости ряда характеристик процесса переключения (после активации α , подвижность доменных стенок μ и др.) имеют особенности, не согласующиеся с общепринятыми представлениями о монотонном характере этих зависимостей [4–5]. Существование таких особенностей связано с присутствием в кристалле дефектов, оказывающих воздействие на динамику его доменной структуры во внешнем электрическом поле. Следует подчеркнуть, что проявление особенностей в поведении указанных характеристик процесса переполяризации является достаточно «тонким» эффектом, обнаружить который можно лишь при определенном сочетании условий эксперимента и свойств кристалла (температура, величина переполяризующего поля, частота следования импульсов, концентрация дефектов). В частности, как следует из наших предыдущих работ [1–3], величина переполяризующего поля должна быть сравнительно небольшой — до $1 \div 1.5 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$, а чтобы кристалл мог переключаться в таких полях, содержание дефектов в нем должно быть малым.

Наиболее эффективным способом контролируемого, дозированного введения дефектов, позволяющим к тому же сопоставить свойства одного и того же образца как до, так и после образования дефектов, является облучение кристалла.

Кристаллическая структура ТГС столь сложна, что воздействие жесткого электромагнитного излучения приводит к созданию в этом кристалле большого числа дефектов [6], влияющих на доменную структуру и ее динамические свойства [7].

Целью настоящей работы явилось изучение влияния малых (до 250 kR) доз рентгеновского облучения (энергия излучения 30 keV) на параметры процесса импульсной переполяризации кристалла ТГС.

Измерения проводились по стандартной методике Мерца на частоте следования биполярных импульсов 300 Hz в интервале температур от комнатной до точки Кюри (T_c).

Отобранные для исследований образцы номинально чистого ТГС, выращенного ниже T_c , обладали исходными значениями коэрцитивного поля (определенными по петлям диэлектрического гистерезиса на частоте 300 Hz) $E_c \approx 200 \div 300 \text{ V} \cdot \text{cm}^{-1}$. Образцы представляли собой пластины Y-среза размером $0.5 \times 0.5 \times 0.1 \text{ cm}$ с напыленными в вакууме серебряными электродами.

Исследования показали, что и после облучения у разных образцов наблюдаются некоторые отличия в величине и температурном поведении параметров переключения, обусловленные, очевидно, различиями в исходном (до облучения) состоянии их доменной структуры. Вместе с тем в процессах переключения облученных образцов наблюдаются определенные общие закономерности, обсуждение которых приводится далее.

Измеряемыми величинами являлись интегральные характеристики переключения: максимальное значение импульса тока переключения i_{\max} и полное время переключения τ_s . Значения поля активации определялись из зависимостей i_{\max} от напряженности переполяризующего поля [4]

$$i_{\max} = i_{\max\infty} e^{-\alpha/E}.$$

Зависимости $\ln i_{\max}$ от $1/E$, как видно из рис. 1, представляют собой прямые, точка излома на которых разделяет области «слабых»

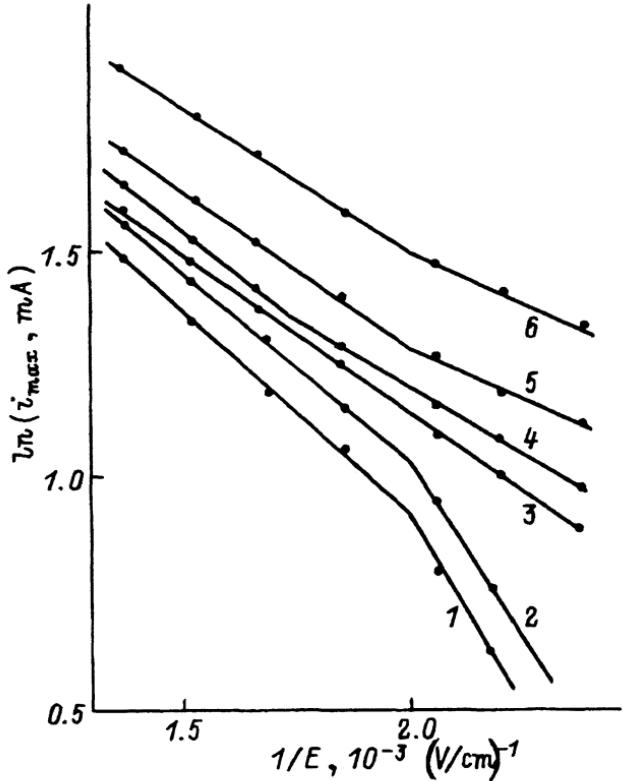


Рис. 1. Зависимости $\ln i_{\max}$ от $1/E$ для облученного ТГС при различных температурах.

• T ($^{\circ}\text{C}$): 1 — 28, 2 — 30, 3 — 34, 4 — 36, 5 — 40, 6 — 46. Доза облучения — 40 kR.

и «сильных» полей, которым отвечают значения поля активации соответственно α_1 и α_2 . Для номинально чистых кристаллов излом на зависимостях $\ln i_{\max}(1/E)$ вообще может не наблюдаться ($\alpha_1 = \alpha_2$), что указывает, по-видимому, на отсутствие преобладания какого-либо одного механизма переполяризации при заданных значениях переполяризующего поля, а если он присутствует, то во всем исследованном интервале температур $\alpha_2 > \alpha_1$, что согласуется с литературными данными (например, [8]).

Возникновение радиационных дефектов может изменять соотношение между значениями α_1 и α_2 . Как видно из рис. 1, при температурах выше 32–34°C (температурная область перестройки доменной структуры ТГС [3]) и, особенно, при температурах, близких к T_c , $\alpha_2 > \alpha_1$. При температурах ниже 32–34°C — наоборот: $\alpha_2 < \alpha_1$ (и при понижении температуры этот эффект усиливается). Область температур, соответствующая перестройке доменной структуры, является выделенной для кристалла с радиационными дефектами, так как именно здесь исчезает различие между значениями α_1 и α_2 в заданном интервале полей (в нашем случае — до 800 V·cm⁻¹).

Этот интересный результат (поле активации в «слабых» полях больше поля активации в «сильных» полях) проявляется более отчетливо и наблюдается практически во всем исследованном интервале температур от комнатных до T_c при увеличении дозы радиации, что видно из рис. 2, на котором представлены зависимости $\alpha(T)$ для номинально чистого ТГС (кривая 1) и этого же образца, получившего последовательно дозы 40 (кривая 2) и 120 kR (кривые 3 и 4). Кривые 3 и 4 отличаются лишь температурой облучения.

Уменьшение значений α после первого облучения малыми дозами ($D = 20 \div 40$ kR, мощность дозы $N_D \approx 240$ kR·h⁻¹), наблюдаемое для всех исследованных в работе образцов (кривая 2 на рис. 2), может иметь место либо в ограниченном, либо во всем исследованном интервале температур и является, вероятно, следствием «радиационного отжига» кристалла. «Радиационный отжиг» наблюдался ранее по ди-

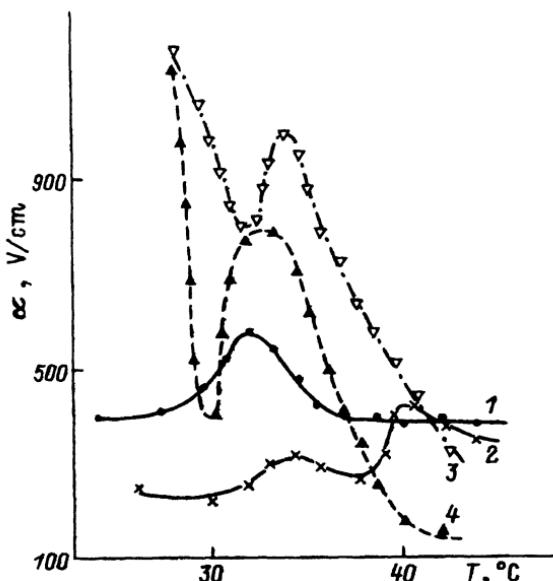


Рис. 2. Температурные зависимости поля активации для кристаллов ТГС.

1 — необлученный кристалл, 2 — облученный, $D = 40$ kR (первое облучение), 3 — $D = 120$ kR (повторное облучение), $\alpha_1(T)$, 4 — то же, $\alpha_2(T)$.

электрическим измерениям в кристаллах группы KDP и в ТГС (например, [9]), а применительно к параметрам импульсной переполяризации, по-видимому, в кристаллах ТГС обнаружен впервые. Следует отметить, что в номинально чистых кристаллах ТГС, как было показано нами ранее [1,2], зависимость $\alpha(T)$ не подчиняется закону $\alpha \sim (T_c - T)^{1/2}$ и имеет максимум, приходящийся на область перестройки доменной структуры. Немонотонный характер этой зависимости сохраняется и в облученных кристаллах ТГС (рис. 2).

Возрастание α_1 и α_2 в облученном кристалле по сравнению с номинально чистым (если доза превышает значения D , при которых еще имеет место «радиационный отжиг»), а также при увеличении D , что согласуется с данными работы [10], связано с тем, что в присутствии радиационных дефектов процесс переполяризации затруднен.

Как следует из рис. 3 (зависимости 1 и 2), после облучения образца во всем исследованном интервале температур существенно уменьшается t_s — время полного переключения. Значения i_{\max} изменяются в гораздо меньшей степени. При этом, как показывает опыт, они могут возрастать (рис. 3, зависимости 3 и 4), убывать или оставаться неизменными, что зависит от дозы облучения и от времени, прошедшего между облучением и измерением. Независимо от этого во всех случаях имеет место уменьшение после облучения величины переключаемого заряда (рис. 4). Поскольку при использованных в работе дозах рентгеновского облучения величина спонтанной поляризации кристалла, определенная на частоте 300 Hz по петлям диэлектрического гистерезиса, не изменилась, уменьшение переключаемого заряда может быть связано только с тем, что в облученном образце уменьшился переключаемый объем, т.е. часть образца «зажата» радиационными дефектами и не участвует в процессе переполяризации.

Данное обстоятельство позволяет объяснить полученные в настоящей работе температурные зависимости подвижности доменных стенок

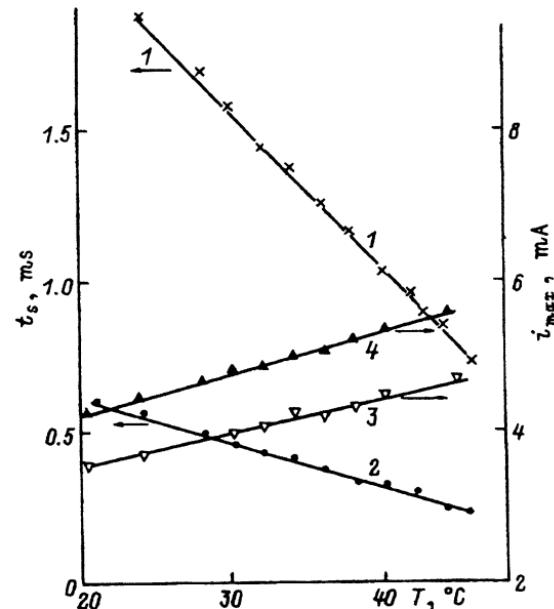


Рис. 3. Температурные зависимости полного времени переключения (1, 2) и максимума тока переключения (3, 4).

1, 3 — необлученный образец, 2, 4 — облученный образец ($D = 40$ kR).

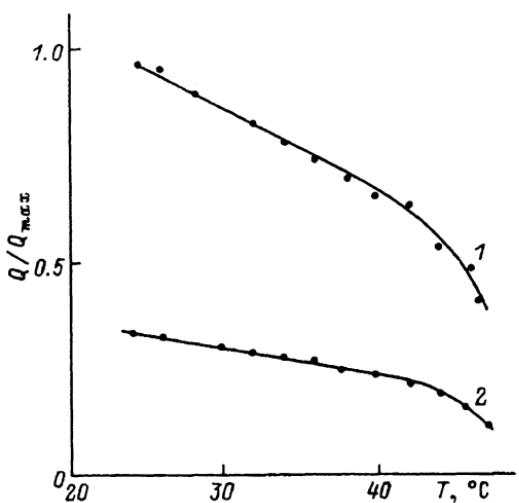


Рис. 4. Температурные зависимости переключаемого заряда (в относительных единицах) для необлученного ТГС (1) и облученного ($D = 40$ кР) (2).

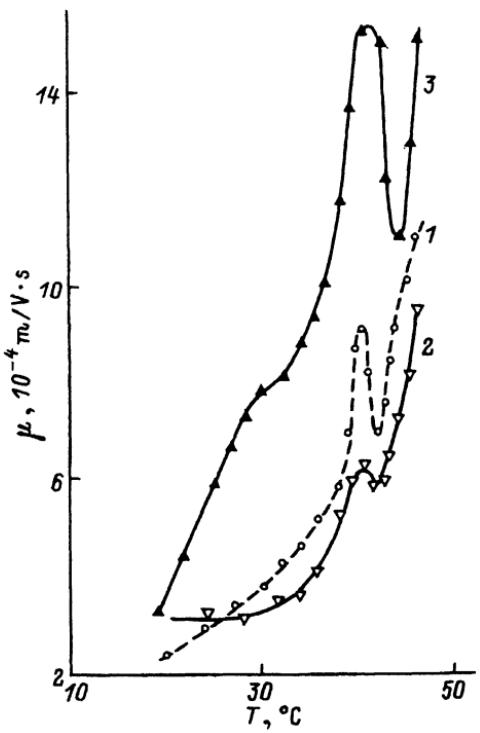


Рис. 5. Температурные зависимости по-
движности доменных стенок кристаллов
ТГС.

1 — необлученный кристалл, 2 — облученный,
 $D = 40$ кР, 3 — $D = 120$ кР.

(рис. 5). Наблюдаемое возрастание μ при приближении температуры к T_c согласуется с литературными данными [5]. После первого облучения малой дозой, когда, как можно предположить, переполяризуется еще весь объем образца, подвижность доменных стенок уменьшается (кривая 2 на рис. 5), что также согласуется с данными других авторов [7]. Однако дальнейшее увеличение дозы приводит к возрастанию μ (кривая 3 на рис. 5), которое тем значительнее, чем больше доза облучения. Как показывают наши результаты, начиная с некоторой дозы кривая $\mu(T)$ во всем температурном интервале располагается значительно выше аналогичной кривой для необлученного кристалла, что противоречит существующим представлениям о влиянии радиационных дефектов на подвижность доменных стенок.

Значения μ в настоящей работе оценивались, как это обычно принято [4,7], по формуле $\mu = d^2/U \cdot \tau_s$, где d — толщина образца, U — переполяризующее напряжение, приложенное к образцу. Использование этой формулы предполагает, что переполяризация осуществляется во всем объеме образца, а это, как было показано выше, не всегда выполняется в облученных кристаллах. Выключение части объема образца из процесса переполяризации приводит к тому, что переключение осуществляется за значительно меньший промежуток времени, что выражается в уменьшении измеряемых значений τ_s . Уменьшение τ_s в соответствии с приведенной формулой вызывает увеличение расчетных значений μ .

Таким образом, можно считать, что получаемое из опытных данных увеличение μ с ростом дозы является кажущимся эффектом, так как при данных значениях переполяризующего поля, когда переключается не весь объем кристалла, определяется не истинное значение μ .

Наблюдаемое на опыте превышение значений α_1 над значениями α_2 для облученных образцов остается не вполне понятным. Одно из возможных объяснений этого результата заключается в следующем. При той концентрации радиационных дефектов, которая отвечает использованным в работе дозам облучения, переполяризация в «слабых» полях затруднена, что подтверждается увеличением α_1 по сравнению с необлученным кристаллом. Можно предположить, что при переходе в область «сильных» полей переполяризующее поле отрывает часть доменных стенок от закрепляющих их радиационных дефектов, вследствие чего условия переполяризации облегчаются [11,12] и значения поля активации убывают. Естественно, что наблюдаемый эффект зависит от всего комплекса условий эксперимента: концентрации дефектов, величины поля, температуры. Детальное изучение этого вопроса будет предпринято в дальнейших исследованиях.

Список литературы

- [1] Камышева Л.Н., Дрождин С.Н., Сердюк О.М., Шевченко Н.Н. // Релаксационные процессы в диэлектриках. Воронеж, 1990. С. 16–21.
- [2] Камышева Л.Н., Дрождин С.Н., Косарева О.А. // Материалы, элементы и устройства функциональной электроники. Воронеж, 1992. С. 23–28.
- [3] Камышева Л.Н., Дрождин С.Н., Косарева О.А. // ФТГ. 1993. Т. 35. № 3. С. 854–856.
- [4] Иона Ф., Ширане Д. Сегнетоэлектрические кристаллы: Пер. с англ. М., 1965. 555 с.
- [5] Сонин А.С., Струков Б.А. Введение в сегнетоэлектричество. М., 1970. 271 с.

- [6] Демьянчук А.П. Автореф. канд. дис. Киев, 1976.
- [7] Пешиков Е.В. Радиационные эффекты в сегнетоэлектриках. Ташкент, 1986. 134 с.
- [8] Донцова Л.И. Автореф. докт. дис. Воронеж, 1991.
- [9] Бурданина Н.А., Камышева Л.Н., Жуков О.К. // Кристаллография. 1970. Т. 15. № 4. С. 834–836.
- [10] Abboud B., Le Bihan R., Michelet A., M'Bama F., Hilczer B. // Ferroelectrics. 1993. V. 140. P. 45–51.
- [11] Камышева Л.Н., Бурданина Н.А., Жуков О.К., Беспамятнова Л.А. // Кристаллография. 1969. Т. 14. № 1. С. 162–163.
- [12] Drozdin S.N., Kamysheva L.N., Liberman Z.A. // Phys. Stat. Sol. (a). 1986. V. 94. P. K69–K73.