

## Электролюминесцентное исследование процессов изменения поляризации в кристаллах магнониобата свинца в импульсном электрическом поле

© Н.Н. Крайник, С.А. Попов\*, С.А. Флерова\*

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

\* Днепропетровский государственный университет,  
320625 Днепропетровск, Украина

(Поступила в Редакцию 16 августа 1996 г.)

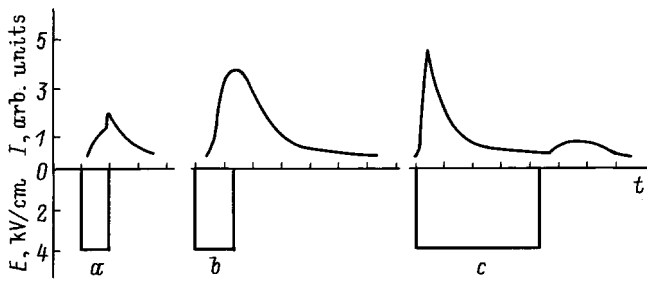
В кристаллах модельного сегнетоэлектрического релаксора — магнониобата свинца (PMN) — с помощью электролюминесценции проведены исследования изменений поляризации в импульсном электрическом поле. Обнаружено возникновение зависимости амплитуды импульсов электролюминесценции, наблюдающихся при поляризации и деполяризации кристалла PMN, от длительности прикладываемых импульсов электрического поля, если эта длительность меньше вероятного времени установления поляризации. Полученные результаты свидетельствуют об интенсивных процессах изменений поляризации путем перестройки доменной и гетерофазной структуры при температурах выше температуры разрушения индуцированной макродоменной сегнетоэлектрической фазы и о возникновении "возбужденного" состояния поляризации при малых длительностях импульсов, распад которого сопровождается увеличением амплитуды деполяризационного импульса люминесценции и уменьшением времени задержки его излучения после окончания импульса поля.

Изменения состояния поляризации в модельном сегнетоэлектрическом релаксоре — магнониобате свинца  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  (PMN) — широко исследуются в последние годы в связи с важностью общей проблемы неупорядоченных сред, включающей проблему возникновения сегнетоэлектричества в подобных средах. В PMN в отсутствие электрического поля не возникает однородная сегнетоэлектрическая фаза, ниже температуры  $T_g$  образуется низкотемпературное стеклоподобное состояние, что объясняется неупорядоченным распределением ионов магния и ниобия в октаэдрических положениях решетки. В электрическом поле выше критического при температуре  $T_f$ , зависящей от величины поля, наблюдается фазовый переход в макродоменное сегнетоэлектрическое состояние (см., например, [1,2]). В некотором интервале полей этот индуцированный переход является переходом первого рода [3] и в узком интервале температур сопровождается возникновением гетерофазной фрактальной структуры [4]. Природа и свойства состояния, возникающего выше температур  $T_g$  и  $T_f$ , которое может быть названо релаксорным, изучены недостаточно. Именно в этом неоднородном состоянии существуют локальные поляризованные области, возникает спонтанная деформация элементарной ячейки, наблюдаются релаксационные максимумы в температурной зависимости диэлектрической проницаемости, большой электрооптический эффект [5], интенсивная электролюминесценция, связанная с процессами изменения поляризации под действием электрического поля [6], наблюдаемая не только при поляризации, но также и при деполяризации кристалла [7], обнаружен рост радиуса сегне-

тоэлектрического корреляционного взаимодействия при понижении температуры, переходящий в насыщение в стекловом низкотемпературном состоянии [8], а также другие необычные свойства. Однако вопросы возникновения в релаксорном состоянии областей сегнетоэлектрической фазы, характер гетерофазной и доменной структуры, природа механизмов изменения поляризации в электрических полях требуют дальнейших исследований.

Электролюминесценция является чувствительным методом исследования процессов изменений поляризации в сегнетоэлектрических средах [9]. Зависимости интенсивности электролюминесценции от времени характеризуют развитие процессов изменения поляризации, индуцирующих электролюминесценцию. В настоящей работе проведены исследования интенсивности электролюминесценции в релаксорной фазе PMN в импульсном электрическом поле в зависимости от длительности импульса.

К кристаллу PMN с InGa-электродами в направлении [001] прикладывались прямоугольные биполярные импульсы с частотой повторения 100 Hz, с длительностью фронта и среза  $\cong 10^{-7}$  s и напряженностью 4 kV/cm. Импульсы электролюминесценции регистрировались в перпендикулярном направлении с помощью фотоумножителя ФЭУ-97. Выбранная напряженность возбуждающего поля соответствовала средней величине поля на кривой полевой зависимости амплитуды импульса люминесценции на участке быстрого роста амплитуды с увеличением поля при длительности импульса 100  $\mu$ s [10]. Изучались импульсы электролюминесценции при поляризации кристалла в результате увеличения поля



**Рис. 1.** Схематическое изображение типичных синхронных осциллограмм зависимостей интенсивности электролюминесценции  $I$  и напряженности биполярных импульсов возбуждающего электрического поля  $E$  при различной длительности импульсов поля.  $T = 293$  К. Цена деления по оси  $t$  (в  $\mu\text{s}$ ):  $a$  — 1.0,  $b$  — 1.5,  $c$  — 5.0. Частота повторения импульсов — 100 Нз. Осциллограммы приведены для одной полярности импульсов (зависимости от полярности не наблюдалось).

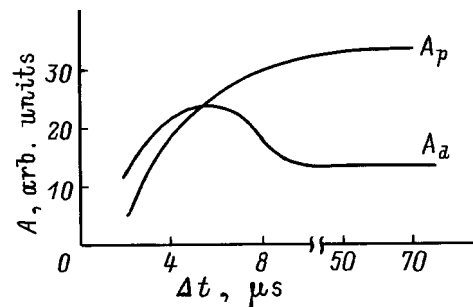
на фронте прикладываемого импульса, а также при деполяризации кристалла, возникающей в результате прекращения действия поля на срезе импульса.

На рис. 1 представлены типичные осциллограммы зависимостей интенсивности электролюминесценции от времени при различной длительности биполярных импульсов. При длительности импульсов  $\Delta t$  от 2 до 5  $\mu\text{s}$  интенсивность люминесценции при поляризации растет в течение всей длительности  $\Delta t$  (рис. 1,  $a$ ), что указывает на незавершенность процесса поляризации в течение таких длительностей. На рис. 1,  $b$  показана осциллограмма для длительности импульса поля, при которой амплитуды импульсов  $A_p$  и  $A_d$  приблизительно равны и наблюдается начало их разрешения. Из рис. 1,  $c$  можно заключить, что длительность процесса установления поляризации, индуцирующего люминесценцию, практически составляет  $\sim 10^{-5}$  с. При длительности импульса меньше  $10^{-5}$  с обнаружена зависимость амплитуды импульсов люминесценции при поляризации  $A_p$ , а также при деполяризации  $A_d$  от длительности импульса, при этом интервалы времени между импульсами поля превышали вероятное время релаксации поляризации.

На рис. 2 показаны зависимости  $A_p$  и  $A_d$  от  $\Delta t$ . С увеличением  $\Delta t$   $A_p$  сначала растет, а затем при значении  $\Delta t$ , превышающем время установления поляризации ( $\Delta t_s \sim 10^{-5}$  с), наблюдается насыщение  $A_p(\Delta t)$ . Эта зависимость связана с величиной поляризации, достигаемой в течение  $\Delta t$ . Интенсивность электролюминесценции при деполяризации  $A_d$  с увеличением  $\Delta t$  также сначала растет, но эта зависимость только частично может быть объяснена ростом величины поляризации, достигаемой за время  $\Delta t$ . Действительно,  $A_d$  становится выше  $A_p$ , затем  $A_d$  проходит через максимум, при  $\Delta t \cong 0.6\Delta t_s$  начинается спад  $A_d$ , и при  $\Delta t$  приблизительно таком же, как  $\Delta t_s$  при поляризации, достигается некоторое

стационарное значение  $A_d$ . Такой характер зависимости  $A_d(\Delta t)$  при малых  $\Delta t$  показывает, что в результате незавершенности процессов поляризации к моменту окончания импульса она находится в возбужденном состоянии, так как в течение  $\Delta t$  не успевают завершиться процессы укрупнения локальных полярных областей и формирования в них доменной структуры, а также процессы экранирования доменных и межфазных границ и их закрепления на дефектах. Из-за незавершенности процессов укрупнения полярных областей и формирования доменной структуры прекращение действия поля практически без задержки вызывает возникновение коллективных процессов распада образовавшегося возбужденного поляризованного состояния кристалла, это проявляется в скачкообразном возникновении деполяризационной люминесценции вблизи среза импульса, как это видно из рис. 1,  $a$ . Дальнейший пологий спад деполяризационной люминесценции может быть связан с постепенным включением процессов распада с меньшей степенью коллективности из-за участия областей кристалла с меньшей концентрацией индуцированной полярной фазы и отражает разброс времен релаксации процесса деполяризации. При увеличении  $\Delta t > 10^{-5}$  с, как это видно из рис. 1,  $c$ , начинает проявляться задержка начала процесса деполяризации, составляющая  $\sim 10^{-5}$  с, возможно связанная с уменьшением коллективности процесса распада поляризованного состояния и характеризующая увеличение времени жизни такого состояния с увеличенной неравновесной концентрацией локальных сегнетоэлектрических областей с экранированными, успевшими закрепиться доменными и межфазными границами.

Влияние степени экранирования доменных и гетерофазных границ и их закрепления на дефектах на протекание процессов поляризации и деполяризации в PMN может объяснить особенности возбуждения электролюминесценции также в однополярном им-



**Рис. 2.** Зависимость амплитуды импульсов электролюминесценции, возникающих при поляризации ( $A_p$ ) и деполяризации ( $A_d$ ) кристалла PMN, от длительности  $\Delta t$  биполярных импульсов электрического поля, приложенного в направлении [001]. Частота повторения — 100 Нз, напряженность поля — 4 кВ/см.

пульсном режиме. В этом режиме максимум в зависимости  $A_d$  от длительности импульса выражен значительно слабее, чем в случае биполярных импульсов, а задержка начала процесса деполяризации начинает проявляться при меньших длительностях импульса. Можно предполагать, что в режиме однополярных импульсов в кристалле возникают большие объемные заряды, облегчающие процессы экранирования и закрепления доменных и гетерофазных границ на дефектах.

Из-за незавершенности процессов экранирования и закрепления на дефектах доменных и межфазных границ в "возбужденном" состоянии поляризации увеличивается подвижность границ. Увеличение скорости движения заряженных границ может приводить к увеличению интенсивности процессов излучательной рекомбинации зарядов, освобождаемых при перестройках доменной и гетерофазной структур. Вследствие этого может повышаться интенсивность люминесценции при поляризации и деполяризации.

Возникновение интенсивной люминесценции в PMN в относительно небольших электрических полях при температурах выше  $T_f$  доказывает, что и в этих условиях возникают сильные локальные электрические поля, превосходящие прикладываемые поля не менее чем на порядок и связанные с перестройками доменной и гетерофазной структур (см., например, [11]). Полученные результаты свидетельствуют о наборе различных механизмов изменения поляризации в электрическом поле порядка нескольких  $kV/cm$  в релаксорном состоянии в PMN: могут индуцироваться локальные сегнетоэлектрические области, обладающие доменной структурой, наблюдаются процессы движения различных доменных и гетерофазных границ и др., что увеличивает ширину распределения времен установления поляризации в этом неоднородном состоянии кристалла.

Возможность возникновения процессов изменения поляризации путем перестройки доменной и гетерофазной структур в этой области температур и полей согласуется с результатами исследования электрооптического эффекта [5,12] и диэлектрической проницаемости [13]. Полученные результаты указывают на возникновение выше  $T_f$  "возбужденных" состояний поляризации, увеличивающих интенсивность электролюминесценции как в синусоидальных полях при достаточно высокой напряженности и частоте [14], так и в импульсных полях при небольших длительностях импульсов. Представляют интерес дальнейшие исследования процессов перестройки доменной и гетерофазной структур в неоднородных сегнетоэлектрических средах. Для таких сред необходимо развитие модельных представлений о формировании и движении заряженных микродоменных границ, которые объясняли бы возникновение больших локальных полей.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 96-02-16958).

## Список литературы

- [1] Z.G. Ye, H. Schmid. *Ferroelectrics* **145**, 83 (1993).
- [2] Е.В. Колла, С.Б. Вахрушев, Е.Ю. Королева, Н.М. Окунева. *ФТТ* **38**, 7, 205 (1996).
- [3] S. Calvarin, E. Husson, Z.G. Ye. *Ferroelectrics* **165**, 349 (1995).
- [4] Л.С. Камзина, Н.Н. Крайник, О.Ю. Коршунов. *ФТТ* **37**, 9, 2765 (1995).
- [5] Г.А. Смоленский, В.А. Боков, В.А. Исупов, Н.Н. Крайник, Р.С. Пасынков, А.И. Соколов, Н.К. Юшин. *Физика сегнетоэлектрических явлений*. Л. (1985). 396 с.
- [6] S.A. Flerova, N.N. Krainik, A.Yu. Kudzin. *Ferroelectrics* **90**, 135 (1989).
- [7] С.А. Флерова, С.А. Попов, Н.Н. Крайник, А.П. Лазарев. *Письма в ЖТФ* **11**, 18, 1134 (1985).
- [8] S.B. Vakhrushev, B.E. Kvyatkovsky, A.A. Naberezhnov, N.M. Okuneva, B.P. Topperberg. *Ferroelectrics* **90**, 173 (1989).
- [9] С.А. Флерова. *Изв. АН СССР. Сер. физ.* **48**, 6, 1233 (1984).
- [10] S.A. Flerova, N.N. Krainik, S.A. Popov. *Ferroelectrics* **82**, 167 (1988).
- [11] А.С. Сидоркин, Б.М. Даринский, Т.Н. Панкова. *Изв. АН СССР. Сер. физ.* **48**, 6, 1135 (1984).
- [12] Н.Н. Крайник, В.А. Трепаков, Л.С. Камзина и др. *ФТТ* **17**, 1, 208 (1975).
- [13] A.E. Glazounov, A.K. Tagantsev, A.J. Bell. *Phys. Rev.* **B53**, 17, 11281 (1996).
- [14] С.А. Флерова, А.Ю. Кудзин, О.Е. Бочков, Н.Н. Крайник. *ФТТ* **31**, 2, 123 (1989).