

УДК 537.31

ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЛЬТ-АМПЕРНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК НОМИНАЛЬНО БЕСПРИМЕСНЫХ КРИСТАЛЛОВ LiNbO_3 КОНГРУЭНТНОГО СОСТАВА

Туник К. С., Яценко А. В.*

Физико-технический институт, Крымский федеральный университет имени В. И. Вернадского,
Симферополь 295007, Россия

*E-mail: yatsenkoav@cfuv.ru

Исследованы электрические свойства номинально чистых кристаллов ниобата лития. Показано, что вольт-амперная характеристика кристаллов LiNbO_3 конгруэнтного состава при относительно низкой температуре ($T \approx 410$ К) является нелинейной при значениях приложенного электрического поля существенно меньше коэрцитивного поля. Обсуждаются причины возникновения нелинейности.

Ключевые слова: LiNbO_3 , ППДС, электрические свойства.

PACS 77.84.Dy, 72.20.-i

ВВЕДЕНИЕ

В современной электронике широко применяются изделия на основе монокристаллов ниобата лития LiNbO_3 и танталата лития LiTaO_3 с периодически поляризованной доменной структурой (ППДС) [1, 2]. Для создания ППДС на полярные поверхности кристалла наносится проводящая маска и после подачи на электроды поляризующего импульса в кристалле формируется доменная структура, соответствующая форме маски. Разность потенциалов между электродами должна обеспечивать внутри кристалла напряженность электрического поля E больше коэрцитивного поля E_c .

Согласно [3] значение E_c в номинально беспримесных образцах НЛ конгруэнтного состава при комнатной температуре составляет 23 кВ/мм и 16 кВ/мм при наложении постоянного электрического поля параллельно и антипараллельно полярной оси кристалла соответственно. Известно, что введение в состав НЛ примеси магния влияет на значение E_c – при т.н. пороговой концентрации магния (5.0 мол.% MgO по шихте) E_c уменьшается примерно в 2 раза [4]. Также отмечается существенное влияние на E_c температуры образца [5].

В большинстве работ, посвященных исследованию электрических свойств кристаллов НЛ по постоянному току основное внимание уделяется механизмам проводимости, а так называемая вольт-амперная характеристика (ВАХ) исследовалась в весьма ограниченном количестве работ.

ВАХ образцов НЛ с пороговой концентрацией магния исследовались в [6]. Показано, что их ВАХ при $T = 443$ К практически линейна вплоть до значений напряженности электрического поля в кристалле $E = 4$ кВ/см, однако в области максимальных значений E наблюдается тенденция к нарушению линейности ВАХ.

Исследования электрической проводимости номинально беспримесных кристаллов НЛ конгруэнтного состава в диапазоне температур 160–300 °С, проведенные в [7, 8] показали, что при $T > 493\text{ К}$ их ВАХ становится нелинейной, причем нелинейность при фиксированном значении E увеличивается с ростом температуры. Причины этого явления не обсуждались.

Исследование ВАХ кристаллов НЛ при значениях напряженности внешнего электрического поля, приближающихся к E_c , может дать дополнительную информацию о механизмах переполяризации кристаллов НЛ. Целью данной работы является изучение возможностей исследования нелинейности ВАХ номинально беспримесных кристаллов НЛ конгруэнтного состава при относительно малых температурах – при $T < 420\text{ К}$.

1. МЕТОДИКА ВЫПОЛНЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Для проведения экспериментов была использован тонкий диск (z-срез), вырезанный из объемного монокристалла НЛ конгруэнтного состава. Диаметр диска равен 12 мм, толщина составляет (1.00 ± 0.02) мм. Полярные поверхности диска были дополнительно обработаны корундовым порошком с диаметром зерна (4–6) мкм, обезжирены и осушены. После этого на них методом втирания были нанесены токопроводящие электроды из In-Ga эвтектики в соответствии с рис. 1. Один из электродов покрывает только центральную часть образца (площадь $\approx 20\text{ мм}^2$) – это сделано для минимизации влияния поверхностной проводимости и уменьшения вероятности пробоев между электродами по воздуху.

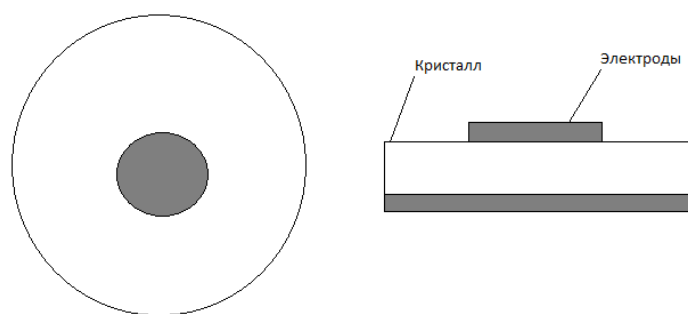


Рис. 1. Расположение электродов на поверхности исследуемого образца

Измерения выполнялись на установке, предназначенной для исследования электрических свойств высокоомных диэлектриков [9]. Дополнительно был разработан регулируемый высоковольтный источник с очень малым уровнем пульсаций (0.008 %) выходного напряжения. Источник обеспечивает выходное напряжение в диапазоне (0.5–3) кВ при токе нагрузки до 1 мА.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для корректной интерпретации результатов эксперимента необходимо знать истинное направление полярной оси в исследуемом образце. Поэтому на первом этапе была выполнена регистрация пирозлектрического тока в режиме разогрева кристалла и из знака пирозлектрического тока было определено направление полярной оси образца. В качестве вспомогательного эксперимента также была установлена температурная зависимость удельной электрической проводимости $\sigma(T)$ данного образца. Измерения $\sigma(T)$ проводились при приложении к кристаллу сравнительно небольшой разности потенциалов – менее 100 В. Результаты этих измерений приводятся на рис. 2. Видно, что электрическая проводимость кристалла в температурном диапазоне (394–452) К определяется только одним типом носителей и энергия активации проводимости равна (1.05 ± 0.02) эВ. Эти результаты хорошо совпадают с известными данными [10].

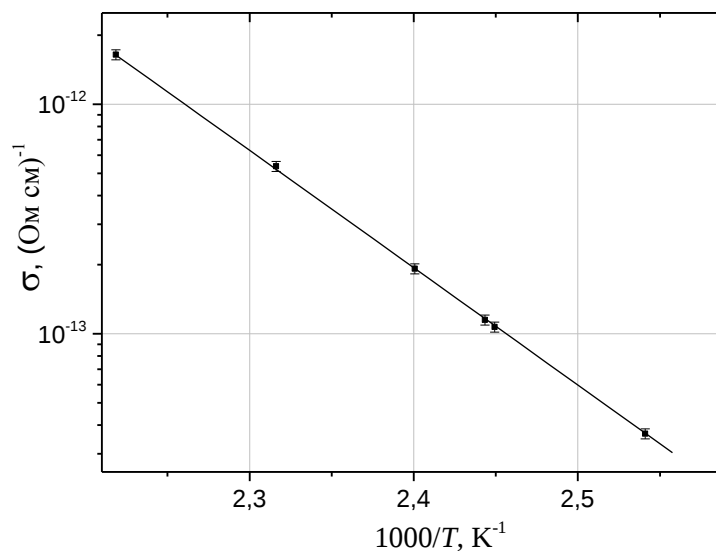


Рис. 2. Температурная зависимость удельной электрической проводимости образца.
Сплошная линия – оптимальная аппроксимация законом Аррениуса

Результаты исследования ВАХ данного образца НЛ, приведенные к температуре $T = 408,3$ К представлены на рис. 3. Положительные значения напряженности внешнего электрического поля соответствуют направлению вектора $\mathbf{E}$ вдоль вектора спонтанной поляризации $\mathbf{P}_0$. Видно, что нарастающее отклонение ВАХ от линейной начинается при $|E| \approx 10$ кВ/см, что существенно меньше значения E_c при этой температуре [5].

Отдельно для положительных и отрицательных значений E была проведена аппроксимация тока через кристалл I_c полиномом 4-го порядка:

$$I_c(E) = a_1|E| + a_2|E|^2 + a_3|E|^3 + a_4|E|^4$$

Проверка показала, что наиболее точная аппроксимация достигается при условии $a_2 = a_3 = 0$, при этом абсолютные значения a_4 несколько отличаются для участков с разной полярностью E , а абсолютные значения a_1 совпадают в пределах погрешности эксперимента

$$\begin{aligned} a_1 &= (25.8 \pm 0.2) \text{ пА} \times \text{см/кВ}; & a_4 &= (26.1 \pm 0.2) \times 10^{-5} \text{ пА} \times (\text{см/кВ})^4 & \text{при } E > 0, \\ a_1 &= (-26.0 \pm 0.2) \text{ пА} \times \text{см/кВ} & a_4 &= (-37.7 \pm 0.3) \times 10^{-5} \text{ пА} \times (\text{см/кВ})^4 & \text{при } E < 0. \end{aligned}$$

Этот факт хорошо согласуется с тем, что петля гистерезиса в кристаллах НЛ асимметрична и значение E_c при $E \uparrow \downarrow P$ существенно меньше, чем для параллельной ориентации вектора E .

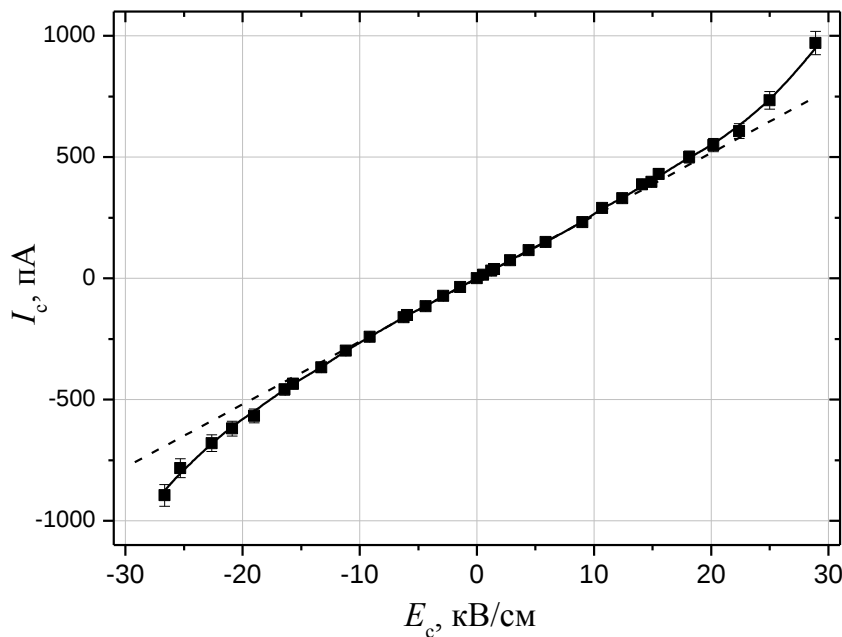


Рис. 3. ВАХ кристалла НЛ при температуре $T = 408,3$ К. Экспериментальные данные представлены точками. Пунктирная линия — линейная аппроксимация центрального участка ВАХ

Появление нелинейности ВАХ может быть индикатором того, кристалл НЛ приближается к состоянию, при котором возможна его реполяризация, в процессе которой ионы лития смещаются под ближайший кислородный слой, а ионы ниобия меняют знак сдвига относительно центра октаэдра NbO_6 [11]. Известно, что при больших значениях напряженности поля начинает сказываться деформация структуры за счет пьезоэлектрического эффекта. Так, согласно [12] при

$E = 51.5$ кВ/см ионы Nb^{5+} смещаются вдоль поля на 4.9×10^{-4} Å относительно кислородной подрешетки, а ионы Li^{+} – на 13×10^{-4} Å. (при комнатной температуре).

Классической причиной, приводящей к нелинейности ВАХ диэлектриков, является инжекция электронов и дырок из электродов, что приводит к возникновению так называемых «токов, ограниченных пространственным зарядом» [13, 14]. Однако этот эффект приводит к квадратичной, либо кубической зависимости тока от напряжения, что противоречит полученным нами данным.

Также установлено, что при приложении к образцу напряжений, отвечающих $|E| > 20$ кВ/см наблюдался эффект медленного увеличения тока через кристалл при неизменной температуре образца, остающегося под напряжением. Этот эффект также требует дополнительного изучения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показано, что нелинейность ВАХ номинально беспримесных кристаллов LiNbO_3 конгруэнтного состава вдоль полярного направления начинает проявляться при температуре образца порядка 410 К и толщине образца 1 мм. Проведение расширенных исследований ВАХ в полярном и неполярном направлении может дать дополнительную информацию о механизмах локальной переполаризации кристаллов LiNbO_3 .

Список литературы

1. Arizmendi L. Photonic applications of lithium niobate crystals // *Phys. Stat. Sol. (a)*. 2004. Vol. 201. Pp. 253–283.
2. Micro- and nanoscale domain engineering in lithium niobate and lithium tantalite / Shur V. Ya., Rumyantsev E., Nikolayeva E., Shishkin E. et al. // *SPIE Proc.* 2000. Vol. 3992. Pp. 143–154.
3. Investigation of ferroelectric coercive field in LiNbO_3 / Wang H. F., Zhu Y. Y., Zhu S. N., Ming N. B. // *Appl. Phys. A*. 1997. Vol. 65. Pp. 437–438.
4. Effect of MgO doping on coercive field in LiNbO_3 crystals / Sen P., Sisodia N., Choubey R. K., Kar S., Bartwal K. S. // *J. Nonlinear Opt. Phys. & Mater.* 2008. Vol. 17. Pp. 175–183.
5. Influence of heat and UV light on the coercive field of lithium niobate crystals / Steigerwald H., Cube von F., Luedetke F., Dierolf V., Buse K. // *Appl. Phys. B*. 2010. Vol. 101. Pp. 535–539.
6. Meyer N., Nataf G., Granzow T. Field induced modification of defect complexes in magnesium-doped lithium niobate. // *J. Appl. Phys.* 2014. Vol. 116. 244102.
7. Chikh-Bled B., Benyoucef B., Aillerie M. Experimental Measurement of electric conductivity and activation energy in congruent lithium niobate crystal // *J. of Active and Passive Electronic Devices*. 2012. Vol. 7. P. 261–270.
8. Chikh-Bled B., Aillerie M., Benyoucef B. Dark and photo-conductivity measurement techniques for dielectric materials, application to LiNbO_3 // *J. of Eng. And Appl. Sci.* 2011. Vol. 6. P. 163–167.
9. Установка для исследования импеданса диэлектриков на низких и сверхнизких частотах / Евдокимов С. В., Притуленко А. С., Сапига А. А., Яценко А. В. // *Ученые записки Таврического национального университета им. В.И. Вернадского. Серия «Физико-математические науки»*. 2011. Т. 24 (63), № 2. С. 187–192.
10. Притуленко А. С., Яценко А. В., Евдокимов С. В. Анализ природы электрической проводимости номинально беспримесных кристаллов LiNbO_3 // *Кристаллография*. 2015. Т. 60, № 2. С. 293–298.
11. Gopalan V., Dierolf V., Scrymgeour D. A. Defect-domain wall interactions in trigonal ferroelectrics // *Annu. Rev. Mater. Res.* 2007. Vol. 37. Pp. 449–489.

12. Fujimoto I. Electric-field induced ionic displacement and redistribution of bonding electrons in LiNbO₃ and LiTaO₃ revealed by modulation X-ray diffraction // *Acta Cryst. A*. 1982. Vol. 38. Pp. 337–345.
 13. Рез И. С., Поплавко Ю. М. Диэлектрики. Основные свойства и применение в электронике / М. : Радио и связь. 1989. 288 с.
 14. Kao K. C. Dielectric Phenomena in Solids / Elsevier Academic Press, San Diego. 2004. 582 p.
-

INVESTIGATION OF VOLT-AMPERE CHARACTERISTICS OF NOMINALLY PURE CONGRUENTLY GROWN LiNbO₃ CRYSTALS

Tunik K. S., Yatsenko A. V.*

*Institute of Physics and Technology, V. I. Vernadsky Crimean Federal University, Simferopol
295007, Russia*

*E-mail: yatsenkoav@cfuv.ru

The problem of nonlinearity of the static electrical properties of LiNbO₃ crystals is discussed. We investigate dc conductivity of the thick (1 mm) z-cut plate of congruently grown nominally pure LiNbO₃ crystal in a temperature range 300–450 K. It is shown that volt-ampere characteristic of this sample starts as nonlinear when applied electric field is larger than 12 kV/cm at a temperature $T \approx 410$ K. The causes of nonlinearity are discussed.

Keywords: LiNbO₃, PPDS, electrical properties.

Список литературы

1. L. Arizmendi, *Phys. Stat. Sol. (a)* **201**, 253–283 (2004).
2. V. Ya. Shur, E. Rumyantsev, E. Nikolayeva, E. Shishkin et al, *SPIE Proc.* **3992**, 143–154 (2000).
3. H. F. Wang, Y. Y. Zhu, S. N. Zhu, N. B. Ming, *Appl. Phys. A*. **65**, 437–438 (1997).
4. P. Sen, N. Sisodia, R. K. Choubey, S. Kar, K. S. Bartwal, *J. Nonlinear Opt. Phys. & Mater.* **17**, 175–183 (2008).
5. H. Steigerwald, Cube von F., F. Luedetke, V. Dierolf, K. Buse, *Appl. Phys. B*. **101**, 535–539 (2010).
6. N. Meyer, G. Nataf, T. J. Granzow, *Appl. Phys.* **116**, 244102 (2014).
7. B. Chikh-Bled, B. Benyoucef, M. Aillerie, *J. of Active and Passive Electronic Devices* **7**, 261–270 (2012).
8. B. Chikh-Bled, M. Aillerie, B. Benyoucef, *J. of Eng. and Appl. Sci.* **6**, 163–167 (2011).
9. S. V. Yevdokimov, A. S. Pritulenko, A. A. Sapiga, A. V. Yatsenko, *Scientific Notes of Taurida National V. I. Vernadsky University. Series: Physics and Mathematics Sciences* **24(63)**, No.2, 187–192 (2011).
10. A. S. Pritulenko, A. V. Yatsenko, S. V. Yevdokimov, *Crystallography Reports* **60**, No. 2, 267–272 (2015).
11. V. Gopalan, V. Dierolf, D. A. Scrymgeour, *Annu. Rev. Mater. Res.* **37**, 449–489 (2007).
12. I. Fujimoto, *Acta Cryst. A* **38**, 337–345 (1982).
13. I. S. Rez, Yu. M. Poplavko, *Dielektriki. Osnovnye svoystva i primeneniye v ehlektronike* [Dielectrics. Basic properties and applications in electronics] (Moscow, Radio and communication, 1989) 288 p. [in Russian]
14. K. C. Kao, *Dielectric Phenomena in Solids* (Elsevier Academic Press, San Diego, 2004) 582 p.

*Поступила в редакцию 20.02.2017 г. Принята к публикации 06.05.2017 г.
Received February 20, 2017. Accepted for publication May 06, 2017*