

ПОДВИЖНОСТЬ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА И ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ В МАГНОНИОБАТЕ СВИНЦА В ОБЛАСТИ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА

В.А.Трепаков, А.В.Бабинский, Н.Н.Крайник,
Г.А.Смоленский, А.Н.Самухин

При фазовом превращении в $PbMg_{1/3}Nb_{2/3}O_3$ (PMN) наблюдалось уменьшение дрейфовой подвижности (μ) носителей заряда (НЗ) и увеличение интенсивности фотолюминесценции (ФЛ). Минимум температурной зависимости μ смещается к высоким температурам с ростом электрического поля. Результаты интерпретированы с привлечением модели автолокализованных "фазонных" состояний НЗ в области сегнетоэлектрического фазового перехода (ФП).

Природа электрон-фононного взаимодействия в сегнетоэлектриках, особенно в области ФП еще не выяснена. Существуют различные, порой противоречивые, мнения относительно механизмов рассеяния НЗ в этих соединениях: рассеяние НЗ на LO -фононах [1-3], модель полярона малого радиуса [4] и т. д. Авторы [5] пришли к выводу, что в сегнетоэлектрических перовскитах μ определяется рассеянием на фононах мягкой TO -моды. В этом случае НЗ рассеиваются на критических флуктуациях поляризации решетки, обуславливающих неупорядоченные изменения уровня энергии дна зоны проводимости (ЗП). В области ФП должен наблюдаться минимум μ , отвечающий максимуму диэлектрической проницаемости ϵ_0 , что следует из соотношения $\mu \sim 1/\epsilon_0 + \text{const}$, полученного в [5]. Однако, исследований температурной зависимости μ непосредственно в области ФП не проводилось из-за экспериментальных трудностей, связанных, по-видимому, с узостью температурного интервала ФП. Такого рода исследования в области сегнетоэлектрического ФП могут дать ценную информацию о природе электрон-фононного взаимодействия и возможность проверить теоретические положения, предсказывающие, в частности, существование в области ФП автолокализованных фазонных состояний НЗ, экспериментально еще не наблюдавшихся в сегнетоэлектрических кристаллах [6].

Нами исследовалась температурная зависимость μ в наиболее изученном сегнетоэлектрике с размытым ФП — PMN, в котором температурная область флуктуаций расширена [7]. Величина μ измерялась время-пролетной методикой [8] на образцах, изготовленных в виде полированных пластин, ориентированных в направлении [100], толщиной $\sim 50 \div 300$ мкм, на противоположные грани которых напылялись золотые электроды. Фотоинжекция НЗ осуществлялась лазером на молекулярном азоте ЛГИ-21 ($\lambda \approx 337$ нм, длительность импульса ≈ 8 нсек). Свет эффективно поглощается на глубине ~ 1 мкм, так как для PMN энергия квантов падающего излучения $h\nu > E_g$. Проведенные эксперименты на образцах различной толщины и при различных электрических

поля показали, что наблюдаемый зарядовый импульс является "время-пролетным", и что для определения μ применимо выражение: $\mu \approx 0,8L^2/tV$,

где L — толщина образца, t — время пролета НЗ межэлектродного расстояния, V — приложенное напряжение. При приложении электрического поля E в образцах наблюдалось однородное просветление в скрещенных поляризаторах, что свидетельствовало об относительно однородном распределении поля в диапазоне полей $E = 3 \div 20$ кВ/см. Значения μ НЗ составили для электронов $\mu^e \approx 0,5$ см²/в·сек, для дырок $\mu^p \approx 0,35$ см²/в·сек при 20°С.

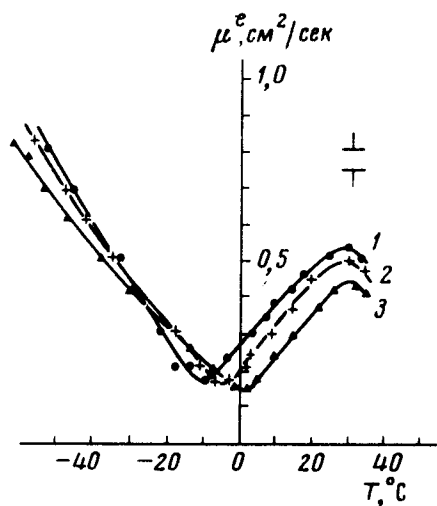


Рис. 1. Температурная зависимость дрейфовой подвижности электронов μ^e в $\text{RbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ при напряженностях электрического поля: 1 — 3,6 кВ/см, 2 — 5,7 кВ/см, 3 — 8,3 кВ/см

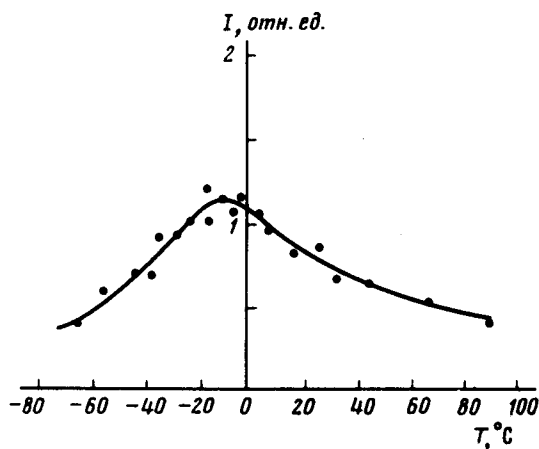


Рис. 2. Температурная зависимость интенсивности фотолуминесценции I в $\text{RbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ в области 590 ± 20 нм (длина волны возбуждающего света $\lambda \approx 337$ нм)

На рис. 1 приведена температурная зависимость дрейфовой μ^e в PMN при различных E . В области средней температуры Кюри μ^e уменьшает-

ся. С ростом E температура, соответствующая минимуму μ^e , растет, как и температура, отвечающая максимуму ϵ_0 [5, 7]. Аналогично ведет себя μ^p . Полученный результат совпадает с выводами [5]. Согласно [6] в области ФП возможно образование фазонных состояний НЗ, способных играть роль уровней прилипания, что тоже приводит к уменьшению μ .

На рис. 2 приведена температурная зависимость ФЛ в РМН с максимумом свечения $\lambda \approx 590$ нм при возбуждении лазером ЛГИ-21. В области -16°C интенсивность ФЛ максимальна. Слабая интенсивность ФЛ не позволила выявить структуру ее спектра и сделать заключение о температурном изменении контура наблюдаемой широкой (~ 60 нм) полосы. Ранее Сивонен [9] обнаружил рост интенсивности ФЛ при сегнетоэлектрическом ($\sim 35\text{K}$) и структурном ($\sim 100\text{K}$) ФП в изолирующем SrTiO_3 , но природа этого явления осталась невыясненной. В сегнетоэлектриках-перовскитах, легированных редкими землями ФЛ не проявляет особенностей в области ФП.

Максимум интенсивности ФЛ в области ФП может быть объяснен следующим образом: предположим, что при фотовозбуждении электроны забрасываются в ЗП, а затем некоторая их часть, после локализации на гетерофазной флуктуации и закрепления фазона на примеси, релаксирует с излучением на глубокий уровень последней. Заметим, что излучательная релаксация наиболее вероятна из фазонных состояний. Интенсивность ФЛ определяется числом фазонов N_1 , закрепленных на примесных центрах:

$$I = N_1 I_0 \quad (1)$$

где I_0 — вклад от одного центра люминесценции. Если концентрация примеси достаточно мала, то $N_1 \ll N_p$, где N_p — общее число фазонов. Предполагая, что и с учетом фазонных состояний время внутризонной релаксации много меньше, чем для межзонной, можно получить, используя [6]:

$$N_p = N \frac{\alpha \zeta}{2} \exp\left(-\frac{\Delta\Phi}{kT}\right) \left[1 + \frac{\alpha \zeta}{2} \exp\left(-\frac{\Delta\Phi}{kT}\right)\right]^{-1} \quad (2)$$

Число $\alpha \sim 1$ учитывает размытость энергии фазонных состояний, $\zeta \sim 10^3$, N — общее число электронов, заброшенных в ЗП, а $\Delta\Phi$ — изменение термодинамического потенциала (ТП) при образовании фазона — электрона, локализованного на зародыше парафазы (в сегнетоэлектриках типа перовскита дно ЗП в парафазе лежит ниже, чем в сегнетофазе). Можно показать, что при условии $N_1 \ll N_i$, где N_i — число атомов примеси, N_1 определяется из выражения:

$$N_1 = \frac{N_i N_p}{N_c} \exp\left(\frac{\Delta\Phi - \Delta\Phi_1}{kT}\right) = \frac{N_i N \alpha \zeta}{2 N_c} \exp\left(-\frac{\Delta\Phi_1}{kT}\right) \left[1 + \frac{\alpha \zeta}{2} \exp\left(-\frac{\Delta\Phi}{kT}\right)\right]^{-L}, \quad (3)$$

где N_c — число элементарных ячеек в кристалле, а $\Delta\Phi_1$ есть изменение ТП для фазона, закрепленного на примеси. При приближении к области ФП из сегнетофазы образование зародышей парафазы облегчается, поэтому $\Delta\Phi$ и $\Delta\Phi_2$ уменьшаются [6]. Так как $\zeta \gg 1$, уже при некотором $\Delta\Phi_1 > 0$ (метастабильные фазоны) практически все электроны находятся в фазонных состояниях (см. формулу (2)). В случае резкого ФП фазоны исчезают при $T > T_0$, где T_0 — температура перехода, следовательно N_1 , а значит и I максималны при некоторой $T^* < T_0$. Из приведенного следует, что ФЛ достигает максимума в области ФП, когда фотоэлектрон возбуждается в зону. Существование в PMN уровня с энергией активации $\sim 2,0$ эВ показано в [10]. Фазоны могут также привести к наблюдавшемуся в [11] резкому увеличению вклада медленной компоненты релаксации фотопроводимости в области ФП в $Ba_{0,25}Sr_{0,75}Nb_2O_6$.

Таким образом, приведенные оценки показывают, что существование фазонных состояний НЗ, сопровождающееся появлением минимума дрейфовой μ НЗ, ведет к росту интенсивности ФЛ в области ФП.

Авторы благодарят Ю.А.Фирсова, С.А.Ктиторова, В.А.Капустина за полезное обсуждение результатов.

Физико-технический институт
им. А.Ф.Иоффе
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
3 августа 1977 г.

Литература

- [1] M.P.R. Frederikse, W.R.Hosler. Phys. Rev., 161, 822, 1967.
- [2] O.N.Tufte, P.W.Chapman. Phys. Rev., 155, 796, 1967.
- [3] T.D.Schulz. Phys. Rev., 116, 526, 1959.
- [4] Э.В.Бурсиан. Нелинейный кристалл титанат бария. М., изд. Наука, 1974.
- [5] S.H.Wemple, M.DiDomenico, A.Jaraman. Phys. Rev., 180, 547, 1969;
M.DiDomenico, S.H.Wemple. Phys. Rev., B1, 4334, 1970.
- [6] М.А.Кривоглаз. УФН, 111, 618, 1973.
- [7] Г.А.Смоленский, В.А.Юков, В.А.Исупов, Н.Н.Крайник, Р.Е.Пасынков, М.С.Шур. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики. М., изд. Наука, 1971.
- [8] M.Martini, J.W.Mayer, K.R.Zanio. Appl. Sol. St. Sc., 3, 182, New-York — London, 1972.
- [9] V.T.Sihvonen. J.Appl. Phys., 38, 4431, 1967.
- [10] В.А.Трепаков, Н.Н.Крайник, А.В.Олифир. ФТТ, 18, 1751, 1976.
- [11] А.Х.Зейналлы, Н.Н.Лебедев, Б.С.Агаронов, А.М.Сафаров, М.К.Шейнкман. ФТТ, 18, 623, 1976.