

# МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ И ТЕХНОЛОГИЯ. ДИЭЛЕКТРИКИ

MATERIALS SCIENCE AND TECHNOLOGY. DIELECTRICS

Известия высших учебных заведений. Материалы электронной техники. 2016. Т. 19, № 2. С. 95—102.  
ISSN 1609-3577. DOI: 10.17073/1609-3577-2016-2-95-102

УДК 621.315.61

## АНИЗОТРОПИЯ ДЕФОРМАЦИИ ПЛАСТИН МОНОКРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ $\gamma + 128^\circ$ -СРЕЗА С БИДОМЕННОЙ СТРУКТУРОЙ

Бидоменные монокристаллы ниобата лития ( $\text{LiNbO}_3$ ) и танталата лития ( $\text{LiTaO}_3$ ) являются перспективным материалом для создания на их основе актюаторов, механоэлектрических преобразователей и сенсоров, способных работать в широком диапазоне температур. При изготовлении таких устройств необходимо учитывать анизотропию свойств используемого материала. Исследованы деформации бидоменных пластин ниобата лития  $\gamma + 128^\circ$ -среза круглой формы под действием внешнего электрического поля. Рассчитаны угловые зависимости пьезоэлектрических модулей кристаллов ниобата и танталата лития и построены их графики для срезов, используемых при изготовлении пластин с бидоменной сегнетоэлектрической структурой. Стационарным внешним нагревом и длительным отжигом с аудифузией лития сформированы бидоменные структуры в круглых пластинах ниобата лития. Методом оптической микроскопии получены зависимости перемещения краев бидоменных кристаллов от угла поворота вокруг нормалей пластин при центральном точечном закреплении и приложении внешнего электрического поля. Проведено моделирование формы деформированной пластины в предположении квадратичной зависимости перемещения краев от радиального расстояния до точки закрепления. Сделан вывод о седлообразном характере деформации бидоменной пластины  $\gamma + 128^\circ$ -среза при приложении постоянной разности потенциалов.

**Ключевые слова:** ниобат лития, танталат лития, бидоменный кристалл, анизотропия деформации, актюатор, пьезоэлектрические свойства

© 2016 г. И. В. Кубасов<sup>1</sup>, А. В. Попов<sup>1,2</sup>, А. С. Быков<sup>1</sup>,  
А. А. Темиров<sup>1</sup>, А. М. Кислюк<sup>1</sup>, Р. Н. Жуков<sup>1</sup>,  
Д. А. Киселев<sup>1</sup>, М. В. Чичков<sup>1</sup>, М. Д. Малинкович<sup>1</sup>,  
Ю. Н. Пархоменко<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС»,  
Ленинский просп., д. 4, Москва, 119049, Россия,  
<sup>2</sup>АО «Оптрон»,  
ул. Щербаковская, д. 53, Москва, 105187, Россия

### Введение

Ниобат лития — это сегнетоэлектрический материал, широко используемый в оптическом, акустическом и электронном приборостроении [1—6]. Такое его разностороннее применение определяется во многом возможностью управления сегнетоэлектрической доменной структурой кристалла, а также ее стабильностью во времени. Большое число исследований, проведенных ранее, было посвящено различным технологическим подходам к созданию заданной конфигурации доменов в ниобате лития, а также в структурно идентичном с ним танталате лития [7—19].

Среди множества возможных вариантов реализации упорядоченной доменной структуры интерес вызывают бидоменные монокристаллы ниобата лития и танталата лития в связи с возможностью использования их в качестве прецизионных пьезоэлектрических биморфных актюаторов для систем позиционирования зондовых микроскопов [20] и рентгеновских дифрактометров [21], в механоэлектрических радиоизотопных генераторах [16], высокотемпературных датчиках вибрации [22], высокочувствительных сенсорах магнитного поля на основе композитных мультиферроиков [23]. Широкий спектр возможных применений объясняется

**Кубасов Илья Викторович**<sup>1</sup> — инженер, аспирант; **Попов Айаал Вячеславович**<sup>1,2</sup> — магистрант; инженер; **Быков Александр Сергеевич**<sup>1</sup> — кандидат техн. наук, доцент; **Темиров Александр Анатольевич**<sup>1</sup> — инженер, аспирант; **Кислюк Александр Михайлович**<sup>1</sup> — магистрант; **Жуков Роман Николаевич**<sup>1</sup> — инженер; **Киселев Дмитрий Александрович**<sup>1</sup> — кандидат физ.-мат. наук, старший научный сотрудник; **Чичков Максим Владимирович**<sup>1</sup> — инженер, аспирант; **Малинкович Михаил Давыдович**<sup>1</sup> — кандидат физ.-мат. наук, доцент; **Пархоменко Юрий Николаевич**<sup>1</sup> — доктор физ.-мат. наук, профессор.

уникальным сочетанием следующих преимуществ ниобата лития над традиционно используемой керамикой цирконата–титаната свинца (ЦТС):

- высокая температура Кюри;
- термостабильность пьезоэлектрических модулей;
- относительно невысокие значения диэлектрической проницаемости;
- отсутствие нелинейности, гистерезиса и ползучести (крипа) при деформации под действием электрического поля [24].

Кроме того, в бидоменных кристаллах полностью отсутствуют клеевые слои и межзеренные границы. Предложено несколько способов формирования бидоменной сегнетоэлектрической структуры в кристаллах  $180^\circ$ -ных сегнетоэлектриков со структурой псевдоильменита, позволяющих получать конфигурацию доменов «голова к голове» и «хвост к хвосту» в ниобате лития ( $\text{LiNbO}_3$ ) [8, 17–19, 25, 26] и конфигурацию доменов «голова к голове» в танталате лития ( $\text{LiTaO}_3$ ) [18].

При разработке и изготовлении актюаторов и механоэлектрических преобразователей важно учитывать анизотропию механических и электрических свойств материала, из которого эти устройства производятся. Ранее авторам были проведены исследования анизотропного характера деформации актюаторов на основе ЦТС [27–29]. На текущий момент для монокристаллических бидоменных структур подобные работы отсутствуют. В то же время монокристаллические пьезоэлектрики обладают более выраженной анизотропией механических и электрических свойств по сравнению с пьезокерамиками, что требует еще большего внимания при разработке того или иного устройства. Ниже рассмотрены результаты исследований деформации круглых монокристаллических пластин  $Y + 128^\circ$ -среза ниобата лития со сформированными бидоменными сегнетоэлектрическими структурами типа «голова к голове» и «хвост к хвосту».

### Теоретический анализ

При приложении электрического поля пластина бидоменного кристалла деформируется аналогично биморфу: один из доменов удлиняется, а другой укорачивается. Это приводит к изгибу структуры в целом. Движущей силой такой деформации является поперечный пьезоэлектрический эффект. Расположим прямоугольную декартову систему координат таким образом, чтобы ось  $Y''$  была перпендикулярна к плоскости пластины, а  $X''$  и  $Z''$  лежали в плоскости пластины. В общем случае любой срез кристалла может быть получен двумя последовательными поворотами кристаллографической системы координат на эйлеровские углы  $\alpha$  и  $\varphi$  от стандартной ориентации, для которой обычно имеются справочные данные о различных свойствах материала (рис. 1).

Пьезоэлектрические модули составляют тензор третьего ранга  $d_{ijk}$ , содержащий 27 компонент. При повороте осей координат тензор преобразуется по закону

$$d_{lmn} = a_{li}a_{mj}a_{nk}d_{ijk}, \quad (1)$$

где  $d_{lmn}$  — значения компонент тензора пьезоэлектрических коэффициентов в новой системе координат;  $a_{\alpha\beta}$  ( $\alpha = l, m, n$ ;  $\beta = i, j, k$ ) — значения матриц поворота, суммирование проводится, согласно правилу Эйнштейна.

Матрицы поворота на угол  $\alpha$  вокруг оси  $X$  и поворота на угол  $\varphi$  вокруг оси  $Y'$  имеют следующий вид:

$$a_1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \alpha & \sin \alpha \\ 0 & -\sin \alpha & \cos \alpha \end{pmatrix}; \quad a_2 = \begin{pmatrix} \cos \varphi & 0 & \sin \varphi \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \varphi & 0 & \cos \varphi \end{pmatrix}.$$

Для кристаллов с точечной симметрией  $3m$  имеется 4 независимых компонента тензора пьезоэлектрических коэффициентов, которые в матричном представлении могут быть записаны как

$$d_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -2d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix},$$

где  $d_{15} = 68$  пКл/Н;  $d_{22} = 21$  пКл/Н;  $d_{31} = -1$  пКл/Н;  $d_{33} = 6$  пКл/Н для кристаллов  $\text{LiNbO}_3$ ;  $d_{15} = 26$  пКл/Н;  $d_{22} = 7$  пКл/Н;  $d_{31} = -2$  пКл/Н;  $d_{33} = 8$  пКл/Н для кристаллов  $\text{LiTaO}_3$  [30].

Случаю поперечного пьезоэлектрического эффекта, когда электрическое поле приложено перпендикулярно к плоскости пластины вдоль оси  $Y''$ , а деформация происходит вдоль оси  $Z''$ , соответствует пьезоэлектрический модуль  $d_{233}$  ( $d_{23}$  в матричном представлении). При этом для получения угловой зависимости поперечного пьезоэффекта в плоскости

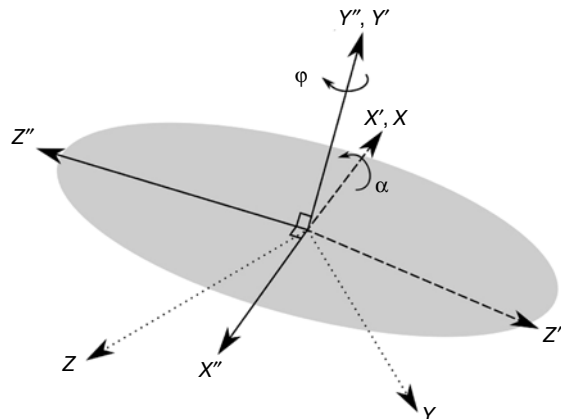


Рис. 1. Последовательный поворот системы координат на углы  $\alpha$  и  $\varphi$  (первый поворот проводится вокруг оси  $X$ , второй поворот — вокруг оси  $Y'$ )

Fig. 1. Sequential rotation of the coordinate system to angles  $\alpha$  and  $\varphi$  (the first rotation is made around the  $X$  axis, the second rotation is around the  $Y'$  axis)

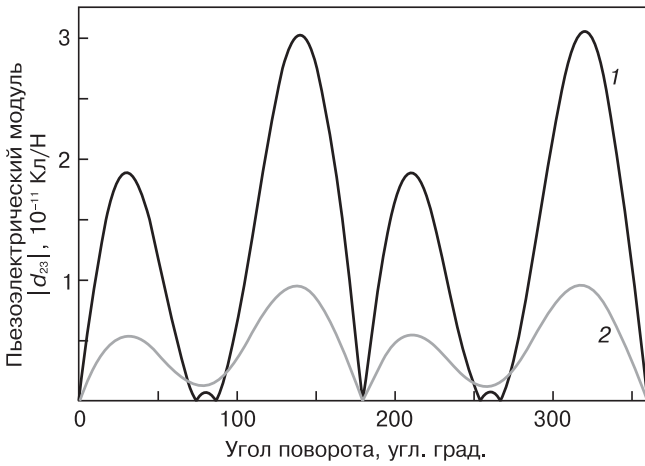


Рис. 2. Зависимости пьезоэлектрических модулей  $d_{23}$  ниобата лития (1) и танталата лития (2) от угла поворота вокруг оси X

Fig. 2. Dependences of lithium niobate (1) piezoelectric modules  $d_{23}$  and lithium tantalate (2) on the rotation angle around the X axis

среза, повернутого на угол  $\alpha$  достаточно рассмотреть зависимость  $d_{23}(\alpha = \text{const } \varphi)$ . Подставим матрицу  $a_1$  в выражение (1). Тогда после первого поворота будем иметь

$$d_{23}(\alpha) = -d_{15} \sin \alpha \cdot \cos^2 \alpha + d_{22} \sin^2 \alpha \cdot \cos \alpha + d_{31} \sin^3 \alpha + d_{33} \sin \alpha \cdot \cos^2 \alpha. \quad (2)$$

Построив график полученной зависимости, можно определить оптимальный угол среза кристалла для изготовления пьезоэлектрического актюатора (рис. 2).

Анализ графика, приведенного на рис. 2, показывал, что наибольшее значение пьезоэлектрического модуля достигается в  $Y + 140^\circ$ -срезе  $\text{LiNbO}_3$  ( $d_{23} = 30$  пКл/Н) и  $Y + 137^\circ$ -срезе  $\text{LiTaO}_3$  ( $d_{23} = 9,6$  пКл/Н). Схожие результаты получены в работах [25, 26], где оптимальный срез оценивали по коэффициенту электромеханической связи. Следует отметить, что полученный график совпадает с представленным в работе [31], в то время как формула (2) отличается от выражения для  $d_{23}$ , что свидетельствует, по-видимому, о наличии опечатки в работе [31].

Рассмотрим зависимость пьезоэлектрического модуля  $d_{23}$  от второго поворота на угол  $\varphi$  вокруг оси  $Y'$ . Для этого еще раз преобразуем тензор  $d_{ij}$  в новую систему координат, используя матрицу поворота  $a_2$ . Получим следующее выражение:

$$d_{23}(\alpha, \varphi) = \sin^2 \varphi (-d_{22} \cos \alpha + d_{31} \sin \alpha) + \cos^2 \varphi (-d_{15} \sin \alpha \cdot \cos^2 \alpha + d_{22} \sin^2 \alpha \cdot \cos \alpha + d_{31} \sin^3 \alpha) + d_{33} \sin \alpha \cdot \cos^2 \alpha. \quad (3)$$

Из коммерчески выпускаемых пластин наиболее близки к оптимальным срез  $Y + 128^\circ$  для ниобата лития и  $Y + 36^\circ$  для танталата лития. Зафиксировав значение  $\alpha$  для этих срезов и используя формулу (3),

можно построить график углового распределения пьезокоэффициента  $d_{23}$  (рис. 3).

Из рис. 3 хорошо видно, что поперечный пьезомодуль меняет знак в плоскости пластины  $Y + 128^\circ$ -среза ниобата лития. Это означает, что при приложении электрического поля к такой пластине она удлиняется в одном и укорачивается в другом направлении. Причем деформация в направлении оси  $Z''$  больше, чем деформация в направлении оси  $X''$ . Зная, что значение перемещения края пьезоэлектрического биморфа прямо пропорционально значению пьезомодуля [32], можно предположить, что бидоменная пластина этого среза будет деформироваться седлообразно. Рассмотрим теперь угловую зависимость пьезокоэффициента  $d_{23}$  для пластины  $Y + 36^\circ$ -среза танталата лития. Пьезомодуль имеет один и тот же знак для всех направлений, лежащих в плоскости пластины, и меняется незначительно. Это позволяет сделать вывод, что бидоменный кристалл

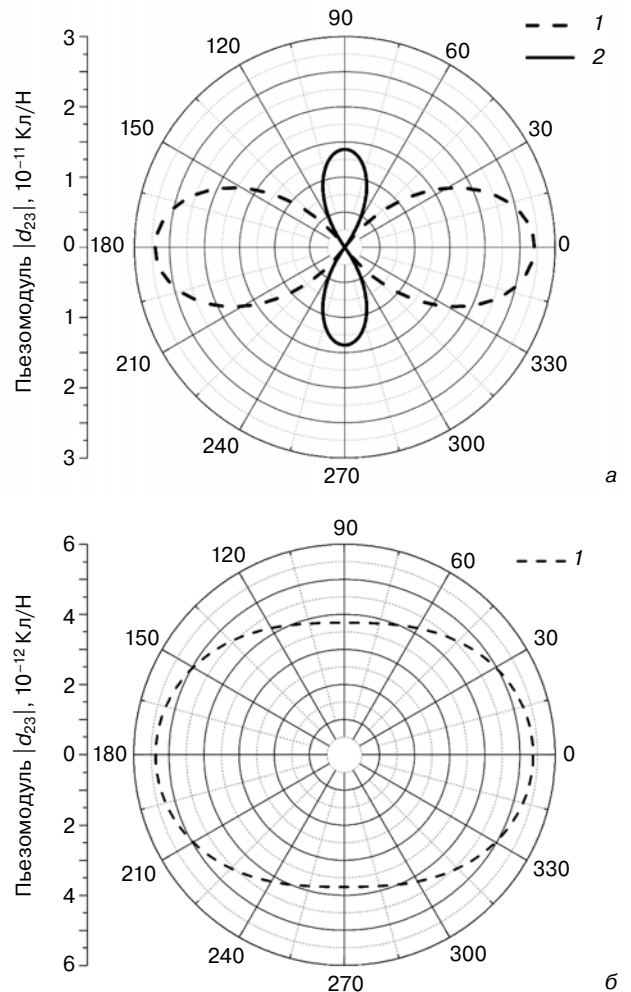


Рис. 3. Зависимости значения поперечного пьезоэлектрического модуля  $d_{23}$  от поворота в плоскости пластины для  $Y + 128^\circ$ -среза  $\text{LiNbO}_3$  (а) и  $Y + 36^\circ$ -среза  $\text{LiTaO}_3$  (б): а: 1 —  $d_{23} < 0$ ; 2 —  $d_{23} > 0$ ; б: 1 —  $d_{23} < 0$

Fig. 3. Dependences of the transverse piezoelectric modulus  $d_{23}$  on the rotation in the plate plane for the  $Y + 128^\circ$  slit  $\text{LiNbO}_3$  (а) and  $Y + 36^\circ$  slit  $\text{LiTaO}_3$  (б): а: 1 —  $d_{23} < 0$ ; 2 —  $d_{23} > 0$ ; б: 1 —  $d_{23} < 0$

танталата лития такой ориентации будет в деформированном под действием электрического поля состоянии иметь вогнутую форму.

### Образцы и методы исследования

Бидоменные кристаллы изготавливали на основе шлифованных круглых пластин ниобата лития  $Y + 128^\circ$ -среза диаметром 40 мм и толщиной 1 мм. Известно, что в зависимости от типа процесса формирования бидоменной структуры характер границы между двумя доменами может отличаться [18, 24]. В частности, при получении бидоменных кристаллов методом стационарного внешнего нагрева [19] резкая граница как таковая отсутствует и имеет место размытая переходная полидоменная область. В то же время при использовании для формирования структуры отжига с аутидиффузией лития [17] междоменная граница, напротив, имеет выраженный резкий вид.

Исследовали образцы двух типов бидоменных структур. Для получения образцов первого типа кристаллы отжигали в печи импульсного инфракрасного нагрева ULVAC VHC-P610 при температуре  $1150^\circ\text{C}$  по методике, подробно описанной в работе [19] (стационарный внешний нагрев). Доменообразование в этом случае происходит под действием внутренних электрических полей, порождаемых градиентом температуры при охлаждении кристалла, а бидоменная структура имеет вид «голова к голове» с полидоменной областью между макродоменами. Образцы второго типа получали по методике, предложенной в работе [17], путем отжига в муфельной печи на воздухе в условиях аутидиффузии лития из кристалла. Бидоменная структура, полученная при таком процессе, также имеет вид «голова к голове» однако, граница между доменами резкая.

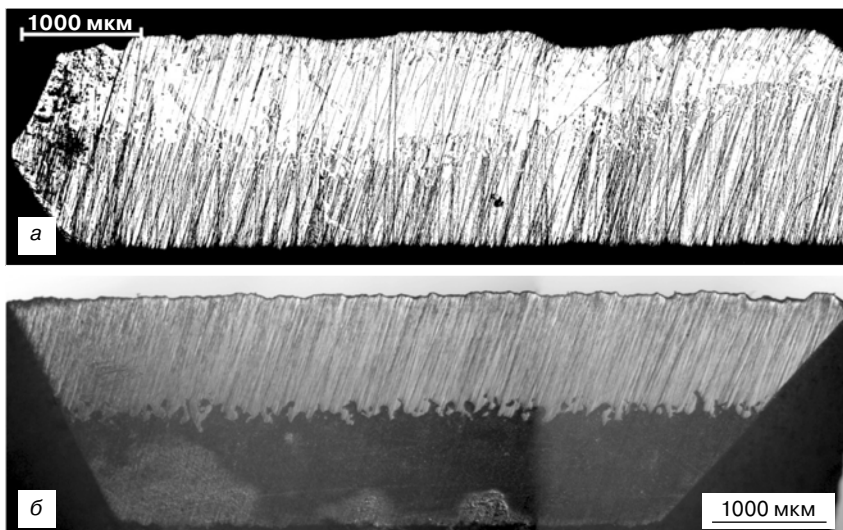


Рис. 4. Протравленные косые шлифы бидоменных структур, сформированных в  $\text{LiNbO}_3$  методом стационарного внешнего нагрева (а) и длительного отжига с аутидиффузией лития (б)

Fig. 4. Etched slants of bdomain structures formed in  $\text{LiNbO}_3$  by the method of stationary external heating (a) and long annealing with lithium autodiffusion (b)

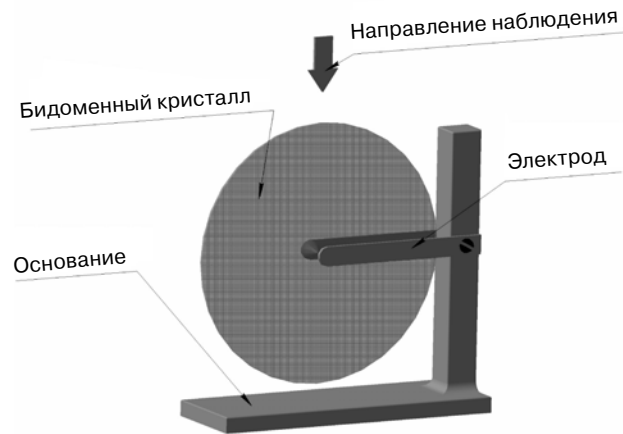


Рис. 5. Схема закрепления бидоменной пластины для измерения деформаций

Fig. 5. Scheme of fastening a bdomain plate for measuring deformations

Для контроля бидоменной структуры одновременно с пластинами для исследования также отжигали кристаллы-«свидетели» размером  $10 \times 10 \times 1 \text{ мм}^3$ . После процесс формирования бидоменной структуры на этих кристаллах подготавливали полированные косые шлифы, которые затем травили в смеси азотной и плавиковой кислот, согласно методике, описанной в работе [33], для визуализации доменной структуры. Фотографии протравленных шлифов представлены на рис. 4.

Бидоменная структура, сформированная методом стационарного внешнего нагрева, менее контрастна, междоменная область имеет выраженный полидоменный характер. Граница между доменами находится в области центра пластины, отклоняясь от средней плоскости на 15–20 % толщины (см. рис. 4, а). Доменная структура, полученная методом длительного отжига с аутидиффузией лития из кристалла, демонстрирует четкий контраст между доменами и залегает посередине пластины (см. рис. 4, б).

После формирования бидоменной структуры на грани образцов методом магнетронного распыления наносили медные электроды толщиной  $\sim 100 \text{ нм}$ .

Для измерения деформации круглые образцы со сформированной бидоменной структурой закрепляли в специальном держателе, зажимая их точно в центре (рис. 5). Для исследования деформаций образец, закрепленный в держателе, размещали под объективом микроскопа и фокусировались на торец бидоменной структуры. Измеряли смещение края кристалла при приложении к нему разности потенциалов  $980 \text{ В}$ . Каждое последующее измерение проводили, поворачивая кристалл в держателе на  $5^\circ$ .

Результаты и их обсуждение

На рис. 6, а и 7, а построены угловые зависимости отклонения краев бидоменных пластин ниобата лития  $Y + 128^\circ$ -среза, полученных методом стационарного внешнего нагрева и длительного отжига соответственно. Из рис. 6, а и 7, а видно, что изгиб пластины имеет неоднородный характер, максимальное перемещение края достигается в направлениях, перпендикулярных к оси  $X''$ , что подтверждает приведенные выше расчеты.

Графики деформации с точностью до константы (в среднем  $3,1 \cdot 10^5 \text{ м} \cdot \text{Н} \cdot \text{Кл}^{-1}$  и  $3,6 \cdot 10^5 \text{ м} \cdot \text{Н} \cdot \text{Кл}^{-1}$  для метода стационарного внешнего нагрева и метода длительного отжига соответственно) повторяют форму графика угловой зависимости пьезомодуля  $d_{23}$ . Это позволяет сделать вывод о линейном характере зависимости между значением поперечного пьезоэлектрического модуля и смещением края пластины

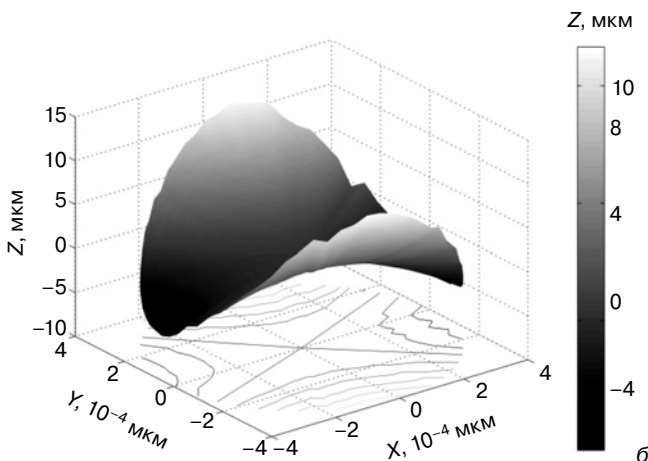
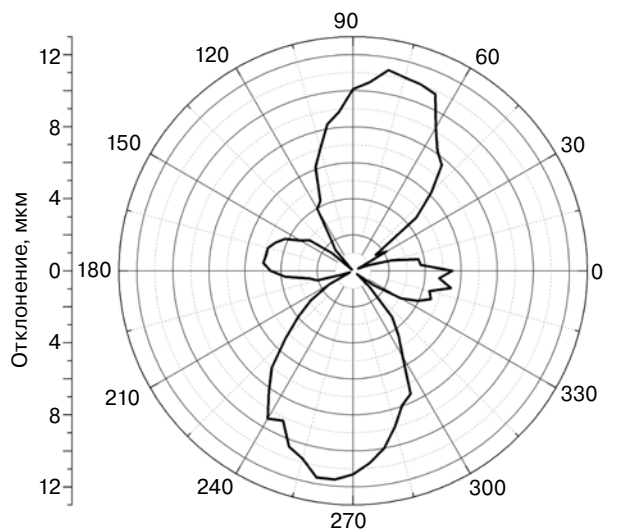


Рис. 6. График зависимости деформации от угла поворота (а) и форма деформированной поверхности (б) кристалла ниобата лития  $Y + 128^\circ$ -среза с бидоменной структурой, сформированной методом стационарного внешнего нагрева

Fig. 6. Diagram of dependence of the deformation on the angle of rotation (а) and the shape of the deformed surface (б) of a lithium niobate crystal  $Y + 128^\circ$  cut with a bimodal structure formed by the method of stationary external heating

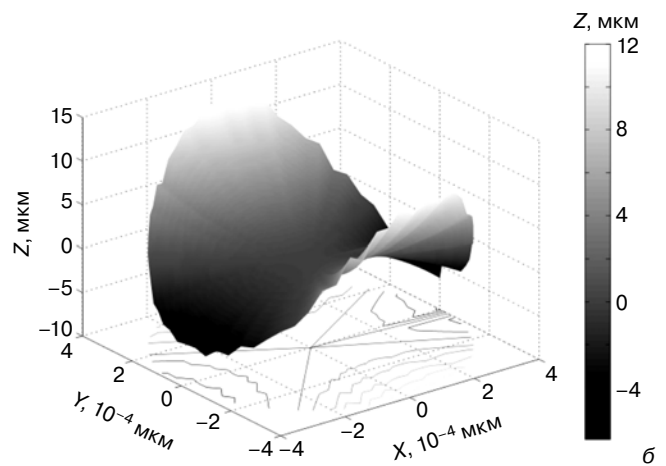
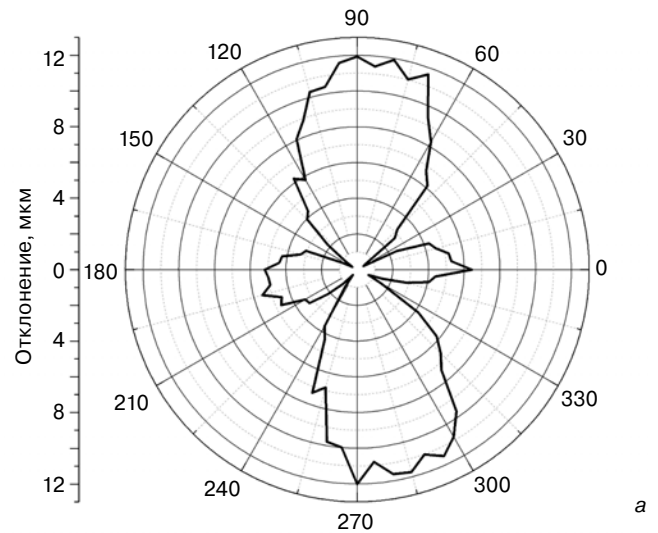


Рис. 7. График зависимости деформации от угла поворота (а) и форма деформированной поверхности (б) кристалла ниобата лития  $Y + 128^\circ$ -среза с бидоменной структурой, сформированной после длительного отжига с аутдиффузией лития

Fig. 7. Diagram of the dependence of the deformation on the angle of rotation (а) and the shape of the deformed surface (б) of the lithium niobate crystal of the  $Y + 128^\circ$  cut with a bimodal structure formed after a long annealing with lithium autodiffusion

в направлении, для которого этот модуль рассчитан. Расхождение между полученными константами составляет  $\sim 14\%$ .

На рис. 6, б и 7, б представлены результаты моделирования формы деформированной под действием электрического поля бидоменной пластины, полученные в предположении, что зависимость отклонения края пластины от расстояния от центра имеет квадратичный характер [32].

Анализ экспериментальных результатов и моделирования позволяет сделать вывод, что при приложении электрического поля бидоменный кристалл ниобата лития  $Y + 128^\circ$ -среза деформируется седлообразно. Ожидаемо, что деформация кристалла с бидоменной структурой, сформированной методом стационарного внешнего нагрева, несколько меньше, чем деформация у кристалла, прошедшего длительный отжиг с аутдиффузией лития вследствие упо-

мянутых выше различий доменной структуры. В то же время максимальные отклонения краев пластин с бидоменной структурой, сформированных методами стационарного внешнего нагрева и длительного отжига, отличаются не более чем на 14 %. Следовательно, наличие размытой полидоменной области посередине бидоменной пластины слабо влияет на максимальную деформацию актюатора при одном и том же напряжении.

При разработке устройств на основе бидоменных кристаллов необходимо учитывать характер зависимости поперечного пьезоэлектрического модуля  $d_{23}$  от поворота в плоскости пластины для  $Y + 128^\circ$ -среза  $\text{LiNbO}_3$  (см. рис. 3, а) и седлообразный характер деформации пластины при приложении внешней постоянной разности потенциалов. В частности, использование таких структур в режиме прямого пьезоэлектрического эффекта (в механоэлектрических преобразователях маломощных генераторов, чувствительных элементах датчиков магнитного поля, сенсорах вибраций, колебаний и пульсаций) при консольном изгибе будет приводить к образованию зарядов противоположного знака в различных точках поверхности кристалла и снижению рабочих характеристик (коэффициента преобразования энергии механической деформации в электрический сигнал). В случае применения бидоменных кристаллов в качестве актюаторов седлообразный характер деформации также может быть вреден. Например, на основе такой структуры не может быть создана фокусирующая лучи зеркальная поверхность. Решение этой проблемы может быть найдено путем выбора другого среза кристалла. В частности, можно выбрать срез с угловой зависимостью пьезомодуля, схожей с аналогичной для танталата лития (см. рис. 3, б), или использовать нескольких гальванически развязанных электродов, расположенных секторами по поверхности пластины.

### Заключение

Проведен анализ характера деформации бидоменных монокристаллов ниобата лития  $Y + 128^\circ$ -среза. Получены аналитические зависимости пьезоэлектрического модуля  $d_{23}$  от угла поворота среза кристалла симметрии  $3m$ . Сформирована бидоменная структура в двух круглых пластинах  $\text{LiNbO}_3$  среза  $Y + 128^\circ$ -среза методами стационарного внешнего нагрева и длительного отжига с аутдиффузией лития. Исследованы протравленные косые шлифы с визуализированной доменной сегнетоэлектрической структурой. При точечном центральном зажатии исследованы смещения краев бидоменных пластин при различных углах поворота вокруг нормали к плоскости пластин и постоянной разности потенциалов 980 В. Сделан вывод о линейном характере зависимости смещения края бидоменной пластины при постоянном приложенном напряжении от значения попе-

речного пьезомодуля  $d_{23}$  в исследуемом направлении. Полученные постоянные пропорциональности составили в среднем  $3,1 \cdot 10^5 \text{ м} \cdot \text{Н} \cdot \text{Кл}^{-1}$  и  $3,6 \cdot 10^5 \text{ м} \cdot \text{Н} \cdot \text{Кл}^{-1}$  для метода стационарного внешнего нагрева и метода длительного отжига соответственно. Проведено моделирование формы деформированной под действием напряжения поверхности бидоменного кристалла в приближении квадратичной зависимости величины смещения края от радиального расстояния до центра пластины. Обнаружен седлообразный характер деформации пластины с максимальным смещением края в направлении, перпендикулярном к кристаллофизической оси  $X$  кристалла в стандартной установке. Полученные результаты должны учитываться при разработке устройств с пьезоэлектрическим бидоменным элементом, таких как актюаторы, механоэлектрические генераторы и сенсоры вибраций, колебаний и пульсаций.

### Библиографический список

1. Volk, T. R. Lithium niobate: defects, photorefractive and ferroelectric switching. In: Springer Series in Materials Science. V. 115 / T. R. Volk, M. Wöhlecke. – Berlin ; Heidelberg: Springer, 2009. – 260 p. DOI: 10.1007/978-3-540-70766-0
2. Arizmendi, L. Photonic applications of lithium niobate crystals / L. Arizmendi // Phys. Status Solidi (a). – 2004. – V. 201, N 2. – P. 253–283. DOI: 10.1002/pssa.200303911
3. Wooten, E. L. A review of lithium niobate modulators for fiber-optic communications systems / E. L. Wooten, K. M. Kissa, A. Yi-Yan, E. J. Murphy, D. A. Lafaw, P. F. Hallemeier, D. Maack, D. V. Attanasio, D. J. Fritz, G. J. McBrien, D. E. Bossi // IEEE Journal of selected topics in Quantum Electronics. – 2000. – V. 6, N 1. – P. 69–82. DOI: 10.1109/2944.826874
4. Gualtieri, J. G. Piezoelectric materials for acoustic wave applications / J. G. Gualtieri, J. A. Kosinski, A. Ballato // IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control. – 1994. – V. 41, N 1. – P. 53–59. DOI: 10.1109/58.265820
5. Scott, J. F. Ferroelectric memories In: Springer Series in Advanced Microelectronics. V. 3 / J. F. Scott. – Berlin ; Heidelberg: Springer, 2000. – 248 p. DOI: 10.1007/978-3-662-04307-3
6. Cross, L. E. Ferroelectric materials for electromechanical transducer applications / L. E. Cross // Materials Chemistry and Physics. – 1996. – V. 43, N 2. – P. 108–115. DOI: 10.1016/0254-0584(95)01617-4
7. Lu, Y. L. Formation mechanism for ferroelectric domain structures in a  $\text{LiNbO}_3$  optical superlattice / Y. L. Lu, Y. Q. Lu, X. F. Cheng, G. P. Luo, C. C. Xue, N. B. Ming // Appl. Phys. Lett. – 1996. – V. 68, N 19. – P. 2642–2644. DOI: 10.1063/1.116267
8. Antipov, V. V. Formation of bidomain structure in lithium niobate single crystals by electrothermal method / V. V. Antipov, A. S. Bykov, M. D. Malinkovich, Yu. N. Parkhomenko // Ferroelectrics. – 2008. – V. 374, N 1. – P. 65–72. DOI: 10.1080/00150190802427127
9. Grilli, S. Investigation on reversed domain structures in lithium niobate crystals patterned by interference lithography / S. Grilli, P. Ferraro, S. de Nicola, A. Finizio, G. Pierattini, P. de Natale, M. Chiarini // Optics Express. – 2003. – V. 11, N 4. – P. 392–405. DOI: 10.1364/OE.11.000392
10. Dierolf, V. Direct-write method for domain inversion patterns in  $\text{LiNbO}_3$  / V. Dierolf, C. Sandmann // Appl. Phys. Lett. – 2004. – V. 84, N 20. – P. 3987–3989. DOI: 10.1063/1.1753057
11. Zhang, X. Domain switching and surface fabrication of lithium niobate single crystals / X. Zhang, X. Dongfeng, K. Kenji // J. Alloys and Compounds. – 2008. – V. 499, N 1–2. – P. 219–223. DOI: 10.1016/j.jallcom.2006.02.091
12. Nutt, A. C. Domain inversion in  $\text{LiNbO}_3$  using direct electron-beam writing / A. C. Nutt, V. Gopalan, M. C. Gupta // Appl. Phys. Lett. – 1992. – V. 60, N 23. – P. 2828–2830. DOI: 10.1063/1.106837
13. Miyazawa, S. Ferroelectric domain inversion in Ti-diffused  $\text{LiNbO}_3$  optical waveguide / S. Miyazawa // J. Appl. Phys. – 1979. – V. 50, N 7. – P. 4599–4603. DOI: 10.1063/1.326568
14. Rosenman, G. Diffusion-induced domain inversion in ferroelectrics / G. Rosenman, V. D. Kugel, D. Shur // Ferroelectrics. – 1995. – V. 172, N 1. – P. 7–18. DOI: 10.1080/00150199508018452

15. **Chen, J.** Influence of growth striations on para-ferroelectric phase transitions: Mechanism of the formation of periodic laminar domains in  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$  / J. Chen, Q. Zhou, J. F. Hong, W. S. Wang, N. B. Ming, D. Feng, C. G. Fang // *J. Appl. Phys.* – 1989. – V. 66, N 1. – P. 336–341. DOI: 10.1063/1.343879
16. **Malinkovich, M. D.** Formation of a bidomain structure in lithium niobate wafers for beta-voltaic alternators / M. D. Malinkovich, A. S. Bykov, I. V. Kubasov, D. A. Kiselev, S. V. Ksenich, R. N. Zhukov, A. A. Temirov, N. G. Timushkin, Yu. N. Parkhomenko // *Russian Microelectronics.* – 2016. – V. 45, N 8. – P. 582–586. DOI: 10.1134/S1063739716080096
17. **Kugel, V. D.** Domain inversion in heat-treated  $\text{LiNbO}_3$  crystals / V. D. Kugel, G. Rosenman // *Appl. Phys. Lett.* – 1993. – V. 62, N 23. – P. 2902–2904. DOI: 10.1063/1.109191
18. **Kubasov, I. V.** Bidomain structures formed in lithium niobate and lithium tantalate single crystals by light annealing / I. V. Kubasov, A. M. Kislyuk, A. S. Bykov, M. D. Malinkovich, R. N. Zhukov, D. A. Kiselev, S. V. Ksenich, A. A. Temirov, N. G. Timushkin, Yu. N. Parkhomenko // *Crystallography Reports.* – 2016. – V. 61, N 2. – P. 258–262. DOI: 10.7868/S0023476116020120
19. **Bykov, A. S.** Formation of bidomain structure in lithium niobate plates by the stationary external heating method / A. S. Bykov, S. G. Grigoryan, R. N. Zhukov, D. A. Kiselev, S. V. Ksenich, I. V. Kubasov, M. D. Malinkovich, Yu. N. Parkhomenko // *Russian Microelectronics.* – 2014. – V. 43, N 8. – P. 536–542. DOI: 10.1134/S1063739714080034
20. **Kubasov, I.** Bimorph single crystalline piezoelectric actuators for scanning probe microscopy / I. Kubasov, M. Malinkovich, A. Bykov, D. Kiselev, A. Temirov, S. Ksenich // 24<sup>th</sup> Internat. Conf. on Materials and Technology. – Portorož (Slovenia), 2016. – P. 124.
21. **Blagov, A. E.** An electromechanical X-ray optical element based on a hysteresis-free monolithic bimorph crystal / A. E. Blagov, A. S. Bykov, I. V. Kubasov, M. D. Malinkovich, Yu. V. Pisarevskii, A. V. Targonskii, I. A. Eliovich, M. V. Kovalchuk // *Instruments and Experimental Techniques.* – 2016. – V. 59, N 5. – P. 728–732. DOI: 10.1134/S0020441216050043
22. **Kubasov, I.** A novel high-temperature vibration sensor based on bidomain lithium niobate crystal / I. Kubasov, A. Kislyuk, M. Malinkovich, D. Kiselev, M. Chichkov, S. Ksenich, A. Temirov, A. Bykov, Yu. Parkhomenko // 7<sup>th</sup> International Advances in Applied Physics and Materials Science Congress and Exhibition. – Oludeniz (Turkey), 2017. – P. 147.
23. **Vidal, J.** Equivalent magnetic noise in magnetolectric laminates comprising bidomain  $\text{LiNbO}_3$  crystals / J. Vidal, A. V. Turutin, I. V. Kubasov, M. D. Malinkovich, Yu. N. Parkhomenko, S. P. Kobeleva, A. L. Kholkin, N. A. Sobolev // *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control.* – 2017. – V. PP, N 99. P. 1–1. DOI: 10.1109/TUFFC.2017.2694342
24. **Kubasov, I. V.** Interdomain region in single-crystal lithium niobate bimorph actuators produced by light annealing / I. V. Kubasov, M. S. Timshina, D. A. Kiselev, M. D. Malinkovich, A. S. Bykov, Yu. N. Parkhomenko // *Crystallography Reports.* – 2015. – V. 60, N 5. – P. 700–705. DOI: 10.1134/S1063774515040136
25. **Nakamura, K.** Bending vibrator consisting of a  $\text{LiNbO}_3$  plate with a ferroelectric inversion layer / K. Nakamura, H. Ando, H. Shimizu // *Jpn. J. Appl. Phys.* – 1987. – V. 26, N S2. – P. 198–200. DOI: 10.7567/JJAPS.26S2.198
26. **Nakamura, K.** Hysteresis-free piezoelectric actuators using  $\text{LiNbO}_3$  plates with a ferroelectric inversion layer / K. Nakamura, H. Shimizu // *Ferroelectrics.* – 1989. – V. 93, N 1. – P. 211–216. DOI: 10.1080/00150198908017348
27. **Crawley, E. F.** Induced strain actuation of isotropic and anisotropic plates / E. F. Crawley, K. B. Lazarus // *AIAA Journal.* – 1991. – V. 29, N 6. – P. 944–951. DOI: 10.2514/3.10684
28. **Bent, A. A.** Anisotropic actuation with piezoelectric fiber composites / A. A. Bent, N. W. Hagood, J. P. Rodgers // *J. Intell. Mater. Syst. and Struct.* – 1995. – V. 6, N 3. – P. 338–349. DOI: 10.1177/1045389X9500600305
29. **Huang, G. L.** The dynamic behaviour of a piezoelectric actuator bonded to an anisotropic elastic medium / G. L. Huang, C. T. Sun // *Internat. J. Solids and Struct.* – 2006. – V. 43, N 5. – P. 1291–1307. DOI: 10.1016/j.jisolsolstr.2005.03.010
30. **Warner, A. W.** Determination of elastic and piezoelectric constants for crystals in class (3m) / A. W. Warner, M. Onoe, G. A. Coquin // *The Journal of the Acoustical Society of America.* – 1967. – V. 42, N 6. – P. 1223–1231. DOI: 10.1121/1.1910709
31. **Shur, V. Y.** Hysteresis-free high-temperature precise bimorph actuators produced by direct bonding of lithium niobate wafers / V. Y. Shur, I. S. Baturin, E. A. Mingaliev, D. V. Zorikhin, A. R. Udalov, E. D. Greshnyakov // *Appl. Phys. Lett.* – 2015. – V. 106, N 5. – P. 053116. DOI: 10.1063/1.4907679
32. **Smits, J. G.** The constituent equations of piezoelectric bimorphs / J. G. Smits, S. I. Dalke, T. K. Cooney // *Sensors and Actuators A: Physical.* – 1991. – V. 28, N 1. – P. 41–61. DOI: 10.1016/0924-4247(91)80007-C
33. **Nassau, K.** The domain structure and etching of ferroelectric lithium niobate / K. Nassau, H. J. Levinstein, G. M. Loiacono // *Appl. Phys. Lett.* – 1965. – V. 6, N 11. – P. 228–229. DOI: 10.1063/1.1754147

*Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (Федеральная целевая программа «Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития научно-технологического комплекса России на 2014–2020 годы») (ID проекта RFMEFI57816X0187).*

ISSN 1609–3577 *Izvestiya vuzov. Materialy elektronnoi tekhniki = Materials of Electronic Technics.* 2016, vol. 19, no. 2, pp. 95–102.

### Deformation anisotropy of $Y + 128^\circ$ -cut single crystalline bidomain wafers of lithium niobate

I. V. Kubasov<sup>1</sup>, A. V. Popov<sup>1,2</sup>, A. S. Bykov<sup>1</sup>, A. A. Temirov<sup>1</sup>, A. M. Kislyuk<sup>1</sup>, R. N. Zhukov<sup>1</sup>, D. A. Kiselev<sup>1</sup>, M. V. Chichkov<sup>1</sup>, M. D. Malinkovich<sup>1</sup>, Yu. N. Parkhomenko<sup>1</sup>

<sup>1</sup>National University of Science and Technology MISiS,  
4 Leninsky Prospekt, Moscow 119049, Russia

<sup>2</sup>JSC «Optron», 53 Sherbakovskaya Str., Moscow 105187, Russia

**Abstract.** Bidomain single crystals of lithium niobate ( $\text{LiNbO}_3$ ) and lithium tantalate ( $\text{LiTaO}_3$ ) are promising material for usage as actuators, mechano-electrical transducers and sensors working in a wide temperature range. It is necessary to take into account anisotropy of properties of crystalline material when such devices are designed. In

this study we investigated deformations of bidomain round shaped  $Y + 128^\circ$ -cut wafers of lithium niobate in an external electric field. Dependencies of piezoelectric coefficients on rotation angles were calculated for lithium niobate and lithium tantalate and plotted for the crystal cuts which are used for bidomain ferroelectric structure forma-

#### Information about authors:

Ilya V. Kubasov<sup>1</sup> — Engineer, Postgraduate Student; Ayaal V. Popov<sup>1,2</sup> — engineer, master's degree student; Alexander S. Bykov<sup>1</sup> — Cand. Sci. (Eng.), Assistant Professor; Aleksandr A. Temirov<sup>1</sup> — Engineer, PhD student; Aleksandr M. Kislyuk<sup>1</sup> — engineer, PhD student; Roman N. Zhukov<sup>1</sup> — Engineer; Dmitry A. Kiselev<sup>1</sup> — Cand. Sci. (Phys.–Math.), Senior Researcher; Maksim V. Chichkov<sup>1</sup> — Engineer, PhD student; Mikhail D. Malinkovich<sup>1</sup> — Cand. Sci. (Phys.–Math.), Assistant Professor; Yurii N. Parkhomenko<sup>1</sup> — Dr. Sci. (Phys.–Math.), Professor.

\*1) Corresponding author

tion. In experiment, we utilized external heating method and long-time annealing with lithium out-diffusion method in order to create round bidomain lithium niobate wafers. In order to obtain dependencies of the bidomain crystals' movements on the rotation angle with central fastening and external electric field application optical microscopy was used. We also modeled a shape of the deformed bidomain wafer with a suggestion that the edge movement depends on the radial distance to the fastening point quadratically. In conclusion, bidomain  $Y + 128^\circ$ -cut lithium niobate wafer exhibits saddle-like deformation when DC electric field is applied.

**Keywords:** lithium niobate, lithium tantalate, bidomain crystal, anisotropy of deformation, actuator, piezoelectric properties

### References

- Volk T. R., Wöhlecke M. Lithium niobate: defects, photorefraction and ferroelectric switching. In: Springer Series in Materials Science. V. 115. Berlin; Heidelberg: Springer, 2009. 260 p. DOI: 10.1007/978-3-540-70766-0
- Arizmeni L. Photonic applications of lithium niobate crystals. *Phys. Status Solidi (a)*, 2004, vol. 201, no. 2, pp. 253–283. DOI: 10.1002/pssa.200303911
- Wooten E. L., Kissa K. M., Yi-Yan A., Murphy E. J., La-faw D. A., Hallemeier P. F., Maack D., Attanasio D. V., Fritz D. J., McBrien G. J., Bossi D. E. A review of lithium niobate modulators for fiber-optic communications systems. *IEEE Journal of selected topics in Quantum Electronics*, 2000, vol. 6, no. 1, pp. 69–82. DOI: 10.1109/2944.826874
- Gualtieri J. G., Kosinski J. A., Ballato A. Piezoelectric materials for acoustic wave applications. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, 1994, vol. 41, no. 1, pp. 53–59. DOI: 10.1109/58.265820
- Scott J. F. Ferroelectric memories In: Springer Series in Advanced Microelectronics. V. 3. Berlin; Heidelberg: Springer, 2000. 248 p. DOI: 10.1007/978-3-662-04307-3
- Cross L. E. Ferroelectric materials for electromechanical transducer applications. *Materials Chemistry and Physics*, 1996, vol. 43, no. 2, pp. 108–115. DOI: 10.1016/0254-0584(95)01617-4
- Lu Y. L., Lu Y. Q., Cheng X. F., Luo G. P., Xue C. C., Ming N. B. Formation mechanism for ferroelectric domain structures in a LiNbO<sub>3</sub> optical superlattice. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, vol. 68, no. 19, pp. 2642–2644. DOI: 10.1063/1.116267
- Antipov V. V., Bykov A. S., Malinkovich M. D., Parkhomenko Yu. N. Formation of bidomain structure in lithium niobate single crystals by electrothermal method. *Ferroelectrics*, 2008, vol. 374, no. 1, pp. 65–72. DOI: 10.1080/00150190802427127
- Grilli S., Ferraro P., de Nicola S., Finizio A., Pierattini G., de Natale P., Chiarini M. Investigation on reversed domain structures in lithium niobate crystals patterned by interference lithography. *Optics Express*, 2003, vol. 11, no. 4, pp. 392–405. DOI: 10.1364/OE.11.000392
- Dierolf V., Sandmann C. Direct-write method for domain inversion patterns in LiNbO<sub>3</sub>. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, vol. 84, no. 20, pp. 3987–3989. DOI: 10.1063/1.1753057
- Zhang X., Dongfeng X., Kenji K. Domain switching and surface fabrication of lithium niobate single crystals. *J. Alloys and Compounds*, 2008, vol. 499, no. 1–2, pp. 219–223. DOI: 10.1016/j.jallcom.2006.02.091
- Nutt A. C., Gopalan V., Gupta M. C. Domain inversion in LiNbO<sub>3</sub> using direct electron — beam writing. *Appl. Phys. Lett.*, 1992, vol. 60, no. 23, pp. 2828–2830. DOI: 10.1063/1.106837
- Miyazawa S. Ferroelectric domain inversion in Ti-diffused LiNbO<sub>3</sub> optical waveguide. *J. Appl. Phys.*, 1979, vol. 50, no. 7, pp. 4599–4603. DOI: 10.1063/1.326568
- Rosenman G., Kugel V. D., Shur D. Diffusion-induced domain inversion in ferroelectrics. *Ferroelectrics*, 1995, vol. 172, no. 1, pp. 7–18. DOI: 10.1080/00150199508018452
- Chen J., Zhou Q., Hong J. F., Wang W. S., Ming N. B., Feng D., Fang C. G. Influence of growth striations on para-ferroelectric phase transitions: Mechanism of the formation of periodic laminar domains in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>. *J. Appl. Phys.*, 1989, vol. 66, no. 1, pp. 336–341. DOI: 10.1063/1.343879
- Malinkovich M. D., Bykov A. S., Kubasov I. V., Kiselev D. A., Ksenich S. V., Zhukov R. N., Temirov A. A., Timushkin N. G., Parkhomenko Yu. N. Formation of a bidomain structure in lithium niobate wafers for beta-voltaic alternators. *Russian Microelectronics*, 2016, vol. 45, no. 8, pp. 582–586. DOI: 10.1134/S1063739716080096
- Kugel V. D., Rosenman G. Domain inversion in heat-treated LiNbO<sub>3</sub> crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, vol. 62, no. 23, pp. 2902–2904. DOI: 10.1063/1.109191
- Kubasov I. V., Kislyuk A. M., Bykov A. S., Malinkovich M. D., Zhukov R. N., Kiselev D. A., Ksenich S. V., Temirov A. A., Timushkin N. G., Parkhomenko Yu. N. Bidomain structures formed in lithium niobate and lithium tantalate single crystals by light annealing. *Crystallography Reports*, 2016, vol. 61, no. 2, pp. 258–262. DOI: 10.7868/S0023476116020120
- Bykov A. S., Grigoryan S. G., Zhukov R. N., Kiselev D. A., Ksenich S. V., Kubasov I. V., Malinkovich M. D., Parkhomenko Yu. N. Formation of bidomain structure in lithium niobate plates by the stationary external heating method. *Russian Microelectronics*, 2014, vol. 43, no. 8, pp. 536–542. DOI: 10.1134/S1063739714080034
- Kubasov I., Malinkovich M., Bykov A., Kiselev D., Temirov A., Ksenich S. Bimorph single crystalline piezoelectric actuators for scanning probe microscopy. *24<sup>th</sup> Internat. Conf. on Materials and Technology*. Portorož (Slovenia), 2016, p. 124.
- Blagov A. E., Bykov A. S., Kubasov I. V., Malinkovich M. D., Pisarevskii Yu. V., Targonskii A. V., Elievich I. A., Kovalchuk M. V. An electromechanical X-ray optical element based on a hysteresis-free monolithic bimorph crystal. *Instruments and Experimental Techniques*, 2016, vol. 59, no. 5, pp. 728–732. DOI: 10.1134/S0020441216050043
- Kubasov I., Kislyuk A., Malinkovich M., Kiselev D., Chichkov M., Ksenich S., Temirov A., Bykov A., Parkhomenko Yu. A novel high-temperature vibration sensor based on bidomain lithium niobate crystal. *7<sup>th</sup> International Advances in Applied Physics and Materials Science Congress & Exhibition*. Oludeniz (Turkey), 2017, p. 147.
- Vidal J., Turutin A. V., Kubasov I. V., Malinkovich M. D., Parkhomenko Yu. N., Kobeleva S. P., Kholkin A. L., Sobolev N. A. Equivalent magnetic noise in magnetolectric laminates comprising bidomain LiNbO<sub>3</sub> crystals. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 2017, vol. PP, no. 99, p. 1–1. DOI: 10.1109/TUFFC.2017.2694342
- Kubasov I. V., Timshina M. S., Kiselev D. A., Malinkovich M. D., Bykov A. S., Parkhomenko Yu. N. Interdomain region in single-crystal lithium niobate bimorph actuators produced by light annealing. *Crystallography Reports*, 2015, vol. 60, no. 5, pp. 700–705. DOI: 10.1134/S1063774515040136
- Nakamura K., Ando H., Shimizu H. Bending vibrator consisting of a LiNbO<sub>3</sub> plate with a ferroelectric inversion layer. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1987, vol. 26, no. S2, pp. 198–200. DOI: 10.7567/JJAPS.26S2.198
- Nakamura K., Shimizu H. Hysteresis-free piezoelectric actuators using LiNbO<sub>3</sub> plates with a ferroelectric inversion layer. *Ferroelectrics*, 1989, vol. 93, no. 1, pp. 211–216. DOI: 10.1080/00150198908017348
- Crawley E. F., Lazarus K. B. Induced strain actuation of isotropic and anisotropic plates. *AIAA Journal*, 1991, vol. 29, no. 6, pp. 944–951. DOI: 10.2514/3.10684
- Bent A. A., Hagood N. W., Rodgers J. P. Anisotropic actuation with piezoelectric fiber composites. *J. Intell. Mater. Syst. and Struct.*, 1995, vol. 6, no. 3, pp. 338–349. DOI: 10.1177/1045389X9500600305
- Huang G. L., Sun C. T. The dynamic behaviour of a piezoelectric actuator bonded to an anisotropic elastic medium. *Internat. J. Solids and Structures*, 2006, vol. 43, no. 5, pp. 1291–1307. DOI: 10.1016/j.ijsolstr.2005.03.010
- Warner A. W., Onoe M., Coquin G. A. Determination of elastic and piezoelectric constants for crystals in class (3m). *The Journal of the Acoustical Society of America*, 1967, vol. 42, no. 6, pp. 1223–1231. DOI: 10.1121/1.1910709
- Shur V. Y., Baturin I. S., Mingaliev E. A., Zorikhin D. V., Udalov A. R., Greshnyakov E. D. Hysteresis-free high-temperature precise bimorph actuators produced by direct bonding of lithium niobate wafers. *Appl. Phys. Lett.*, 2015, vol. 106, no. 5, pp. 053116. DOI: 10.1063/1.4907679
- Smits J. G., Dalke S. I., Cooney T. K. The constituent equations of piezoelectric bimorphs. *Sensors and Actuators A: Physical*, 1991, vol. 28, no. 1, pp. 41–61. DOI: 10.1016/0924-4247(91)80007-C
- Nassau K., Levinstein H. J., Loiacono G. M. The domain structure and etching of ferroelectric lithium niobate. *Appl. Phys. Lett.*, 1965, vol. 6, no. 11, pp. 228–229. DOI: 10.1063/1.1754147

**Acknowledgements.** The work was financially supported by the Ministry of Education and Science of the Russian Federation (Federal Target Program «Research and Development in Priority Areas for the Development of Russia's Science and Technology Complex for 2014–2020») (Project ID RFMEFI57816X0187).