МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ И ТЕХНОЛОГИЯ. ДИЭЛЕКТРИКИ

ИССЛЕДОВАНИЕ ОРИЕНТАЦИОННОЙ ЗАВИСИМОСТИ ЛАТЕРАЛЬНОГО ПЬЕЗООТКЛИКА В Y-СРЕЗЕ ПЕРИОДИЧЕСКИ ПОЛЯРИЗОВАННЫХ МОНОКРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ

© 2012 г. А. С. Быков, Д. А. Киселев, В. В. Антипов, М. Д. Малинкович, Ю. Н. Пархоменко ФГАОУ ВПО «Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС»

В режиме силовой микроскопии пьезоотклика исследована угловая зависимость латеральной составляющей пьезоотклика в монокристаллах ниобата лития Y-среза, содержащих регулярную доменную структуру. Показано, что визуализация доменной структуры определяется ориентацией Х-направления кристалла относительно направления сканирования: наибольший контраст между доменами с противоположной ориентацией векторов поляризации имеет место при расположении вдоль одной прямой Х-направления и направления сканирования.

Ключевые слова: ниобат лития, монокристаллы, силовая микроскопия пьезоотклика, пьезокоэффициенты.

Введение

Сегнетоэлектрические материалы, в том числе монокристаллы ниобата лития, широко используют в оптических системах, например в качестве удвоителей частоты и электрооптических затворов [1]. Удвоение частоты и управление лазерным излучением обусловлено наличием в сегнетоэлектрических материалах периодической или упорядоченной доменной структуры. Доменные структуры для разных применений могут иметь разные размеры и разный период — от нескольких нанометров до сотен микрометров. Очевидно, что рабочие характеристики устройств сильно зависят от параметров и качества доменной структуры. Поэтому актуальным является вопрос характеризации как макро-, так и микродоменной структуры.

К наиболее эффективным методикам визуализации доменной структуры относится силовая микроскопия пьезоотклика (СМП), в том числе в латеральной моде [2]. В последнее время СМП стала стандартным методом исследования сегнетоэлектрических доменов, главным образом из-за своей простоты и высокого пространственного разрешения (до 20 нм [3, 4]).

В этом методе визуализация доменов основана на том, что при приложении при помощи проводящего зонда переменного потенциала к поверхности образца в нем, вследствие пьезоэффекта, генерируются продольные, поперечные и сдвиговые волны, которые вызывают колебания кантилевера, находящегося в контакте с поверхностью. Эти колебания, регистрируемые оптической системой атомно-силового микроскопа, несут информацию об ориентации оси Z и направлении поляризации доменов.

В выполненной ранее работе [2] продемонстрирована возможность применения СМП-методики для визуализации и исследования доменных границ в образцах кристаллов ниобата лития с регулярной доменной структурой. Установлено, что для кристаллов Z-среза различие контраста соседних доменов связано с противоположным направлением в них векторов спонтанной поляризации, а в случае Y-среза по фазовому контрасту латеральных колебаний можно определить знак заряда доменных границ.

Ниже представлены результаты исследований по визуализации доменной структуры в образцах монокристаллов ниобата лития Y-среза СМП-методом в латеральной моде в зависимости от угла между линией междоменной границы и направлением сканирования кантилевера. Данные, полученные таким методом, позволят определить как знак заряда междоменной границы, так и направление оптической оси в плоскости Y-среза.

Экспериментальная часть

Объектами исследований являлись образцы монокристаллов ниобата лития Y-среза, содержащие регулярную доменную структуру, сформированную методом послеростовой термоэлектрической обработки [5]. Образцы ниобата лития представляли собой полированные пластины толщиной 200 мкм. Работу проводили на зондовой нанолаборатории NTEGRA Prima (HT-MДT, Москва) в режиме латеральной моды СМП при приложении переменного напряжения



Рис. 1. Схематические изображения конфигурации доменов при повороте образца (а) и соответствующие латеральные компоненты пьезоотклика кристалла ниобата лития с РДС (б) в зависимости от угла поворота образца относительно направления сканирования.



Рис. 2. Схематическое изображение конфигурации доменов при повороте образца (а) и латеральная компонента пьезоотклика (б) кристалла LiNbO₃ Y–среза. Размер изображений 100 × 100 мкм²

 $U_{AC} = 10$ В с частотой f = 150 кГц. Для исследования топографии поверхности и визуализации доменной структуры использовали кремниевые кантилеверы NSG10/Pt (НТ-МДТ, Москва) с платиновым проводящим покрытием. Все исследования проводили при комнатной температуре.

Для исследования угловой зависимости пьезоотлика в латеральной моде модернизировали установку, дополнив ее поворотным столиком, на котором крепился образец. Контраст измеряли в зависимости от угла между направлением сканирования и линией междоменной границы.

Результаты и их обсуждение

Регулярные доменные структуры (РДС), сформированные в Y-срезах кристалла LiNbO₃ методом послеростовой термоэлектрической обработки вблизи температуры Кюри $T_{\rm K} = 1140$ °C [5, 6], могут различаться взаимной ориентацией векторов спонтанной поляризации $\mathbf{P}_{\rm s}$ в соседних доменах, что приводит к изменению структуры доменных границ. Вектора $\mathbf{P}_{\rm s}$ могут быть антипараллельными и параллельны-

> ми доменной границе ($\mathbf{k} \perp \mathbf{P}_{s}$, где \mathbf{k} — вектор пространственной периодичности [5] (рис 1, *a*), встречными и нормальными к доменной границе ($\mathbf{k} || \mathbf{P}_{s}$, рис. 2, *a*) или иметь промежуточную ориентацию, при этом заряд междоменной границы будет иметь разные знаки и разное абсолютное значение.

> На рис. 1, а показана схема поворота образца с регулярной доменной структурой, в которой междоменные границы параллельны вектору поляризации. В эксперименте образец поворачивали таким образом, чтобы угол между направлением сканирования и линией междоменной границы менялся от -90° до +90° с шагом 45°. На рис. 1, б представлены полученные при этом изображения доменной структуры в латеральной моде СМП. На рис. 3 представлена угловая зависимость пьезоотклика среднего домена (рис. 1, б). Из рис. 3 видно, что наряду с изменением пьезоотклика, абсолютное значение которого достигает максимума при α = $=\pm90^{\circ}$, меняется его знак.

> При расположении междоменной границы перпендикулярно к вектору поляризации получены следующие результаты (см. рис. 2). Максимальный контраст в









Рис. 4. Зависимость амплитуды латерального сигнала пьезоотклика при повороте образца для «положительного» (1) и «отрицательного» (2) домена

изображении доменов в режиме пьезоотклика имеет место, в отличие от предыдущего случая при совпадении направления сканирования и линии междоменной границы; знак доменов, также, в отличие от предыдущего случая, не меняется на противоположный при повороте образца на 180° (рис. 4), изменяются лишь амплитуды сигналов от положительного и отрицательного доменов, которые принимают максимальные значения при сканировании вдоль линии границы.

Обратный пьезоэлектрический эффект является физической причиной пьезоотклика, значение и знак которого при приложении к поверхности кристалла переменного электрического поля определяются, очевидно, выражением

$$\varepsilon_i(\omega t) = d_{ij} E_i(\omega t), \tag{1}$$

где \mathcal{E}_j — компонента относительной упругой деформации; d_{ij} — пьезоэлектрический модуль; $E_i(\omega t)$ — компонента вектора напряженности электрического поля.

Из этого выражения следует, что знак и значение пьезоотклика ε_i определяются знаком модуля d_{ij} , который зависит от ориентации вектора поляризации \mathbf{P}_{s} относительно Z-направления кристалла, его значением, а также кристаллографической ориентацией образца относительно направления регистрируемой деформации (т. е. направления сканирования).

Если считать, что вектор напряженности электрического поля, которое создает проводящий зонд, находящийся в контакте с поверхностью образца, в объеме кристалла перпендикулярен к поверхности, т. е. ориентирован по Ү, то рабочим модулем, создающим деформацию в направлении сканирования, является только d₂₁, который стремится к нулю при повороте в плоскости Х—Z к оси Z (точечная группа ниобата лития 3m, модули для нее см. в работе [7]). Следует отметить, что сдвиговая деформация при приложении поля по оси У возможна только в плоскости У-Z, т. е. перпендикулярно к поверхности образца. Поэтому на латеральную составляющую пьезоотклика она не влияет. Следовательно, регистрируемые колебания являются продольными с параллельным поверхности образца волновым вектором. Таким образом, максимальные значения латерального пьезоотклика должны наблюдаться в том случае, когда Х-направление кристалла и направление сканирования расположены вдоль одной прямой, причем частотная зависимость деформации находится в фазе с вектором E_2 (регистрируется как светлая область образца, см. рис. 1, б и 2, б), если вектор Х направлен вниз, считая, что положительное направление сканирования — вверх (см. рис. 1, а и 2, а), так как модуль d_{21} — отрицательный [7]. Эта модель объясняет изменение знака пьезоотклика при вращении образца в случае ориентации вектора поляризации параллельно междоменной границе и отсутствия такого изменения при перпендикулярном расположении.

Остаточный междоменный контраст, который не должен наблюдаться при перпендикулярном направлении оси X кристалла к направлению сканирования вследствие нулевого значения модуля d_{23} , объясняется наличием некоторой доли составляющей вектора электрического поля по другим, кроме Y, направлениям вследствие того, что контакт зонда с поверхностью можно считать почти точечным.

Заключение

На основании результатов исследования зависимости латеральной составляющей пьезоотклика на Y-срезе монокристаллов ниобата лития выявлены закономерности, имеющие важное методическое значение. Показано, что с помощью измерения угловой зависимости пьезоотклика можно определить кристаллографические направления и ориентацию междоменной границы относительно оптической оси кристалла. По установленной ориентации векторов поляризации относительно междоменной границы легко определить ее знак. Подход, предложенный в настоящей работе, может быть распространен на другие срезы кристалла для идентификации доменной структуры как макроскопических, так и микрометровых размеров.

Библиографический список

1. **Блистанов, А. А.** Кристаллы квантовой и нелинейной оптики / А. А. Блистанов // М. : МИСИС, 2000. – 432 с.

2. Киселев, Д. А. Исследование доменной структуры в монокристаллах LiNbO₃ методом силовой микроскопии пьезоотклика / Д. А. Киселев, А. С. Быков, Р. Н. Жуков, В. В. Антипов, М. Д. Малинкович, Ю. Н. Пархоменко // Кристаллография. – 2012. – Т. 57, № 6. – С. 876.

3. **Jungk**, **T.** Contrast mechanisms for the detection of ferroelectric domains with scanning force microscopy / **T**. Jungk,

A. Hoffmann, E. Soergel // New J. Physics. – 2009. – N11. – P. 033029.

4. Жуков, Р. Н. Распространение поляризации сегнетоэлектрических зерен в электрически изолированных пленках ниобата лития / Р. Н. Жуков, Д. А. Киселев, М. Д. Малинкович, Ю. Н. Пархоменко, Е. А. Выговская, О. В. Торопова // Изв. вузов. Материалы электрон. техники. – 2011. – № 4. – С. 12.

5. Sorokin, N. G. The regular domain structure in $LiNbO_3$ and $LiTaO_3$ / N.G. Sorokin, V. V. Antipov, A. A. Blistanov // Ferroelectrics. – 1995. – V. 167. – P. 267.

6. Antipov, V. V. Formation of bidomain structure in lithium niobate single crystals by electrothermal method /V. V. Antipov, A. S. Bykov, M. D. Malinkovich, Y. N. Parkhomenko // Ferroelectrics. – 2008. – V. 374. – P. 65.

7. **Най Дж.** Физические свойства кристаллов // Дж. Най – М. : Мир, 1967. – 385 с.

Работа выполнена в рамках проекта «Развитие кооперации российских высших учебных заведений и организаций, реализующих комплексные проекты по созданию высокотехнологичного производства» (госконтракт №13.G36.31.0004) и при финансовой поддержке Минобрнауки России на оборудовании ЦКП «Материаловедение и металлургия» на базе НИТУ «МИСиС».

УДК 535.312:548.7

ПЕРСПЕКТИВНЫЕ МАТЕРИАЛЫ АКУСТОЭЛЕКТРОНИКИ

© 2012 г. Д. В. Рощупкин, Д. В. Иржак, Е. В. Емелин, Р. Р. Фахртдинов, О. А. Бузанов^{*}, С. А. Сахаров^{*} ФГБУН «Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН», *ОАО «ФОМОС Материалс»

Представлены результаты исследования многокомпонентных пьезоэлектрических кристаллов группы лантангаллиевого силиката (лангасита). Изучены процессы синтеза и структура кристаллов. С использованием методов рентгеновской топографии и дифрактометрии исследованы акустические свойства кристаллов. Продемонстрирована возможность применения этих пьезоэлектрических кристаллов в высокотемпературных сенсорных устройствах на поверхностных акустических волнах.

Ключевые слова: пьезоэлектрические кристаллы, поверхностные акустические волны, объемные акустические волны, рентгеновская топография, рентгеновская дифрактометрия.

Введение

Развитие современной акустоэлектроники связано с поиском новых перспективных пьезоэлектрических кристаллов, которые обладают хорошими термическими свойствами и имеют высокие значения пьезоэлектрических констант. В последнее десятилетие активно ведется поиск новых пьезоэлектрических материалов из группы лантангаллиевого силикта (лангасита). Кристаллы этой группы обладают точечной группой симметрии 32, как и кристалл пьезокварца SiO_2 , и хорошей термостабильностью [1-4]. Значения коэффициентов электромеханической связи кристаллов этой группы уступают кристаллам LiNbO₃, но превышают соответствующие значения для кристаллов кварца в несколько раз. Ранее авторами детально были исследованы

акустические свойства кристаллов лангасита La₃Ga₅SiO₁₄ (ЛГС) [5—7] и лантангаллиевого танталата (лангатата) La₃Ga_{5,5}Ta_{0,5}O₁₄ (ЛГТ) [8], которые сегодня являются базовыми материалами при создании высокотемпературных датчиков на поверхностных акустических волнах (ПАВ). Следует отметить, что интерес к кристаллам группы ЛГС также связан с отсутствием в этих кристаллах фазовых переходов, вплоть до температуры плавления.

В группе кристаллов ЛГС потенциально могут быть синтезированы более 250 кристаллов. Это не только четырехкомпонентные кристаллы ЛГС и ЛГТ, но и пятикомпонентные кристаллы La₃Ga_{5,5}Ta_{0,3}Al_{0,2}O₁₄ (**ЛГТА)** и Ca₃TaGa₃Si₂O₁₄ (**КТГС)**.

Ниже представлены примеры синтеза пятикомпонентного кристалла группы ЛГС методом Чохральского и последующего исследо-