

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования «Уральский федеральный университет
имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»

На правах рукописи



Грешняков Евгений Дмитриевич

ИСХОДНАЯ ДОМЕННАЯ СТРУКТУРА И ЕЕ ЭВОЛЮЦИЯ
ПРИ ПЕРЕКЛЮЧЕНИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ В МОНОКРИСТАЛЛАХ
НИОБАТА ЛИТИЯ И ТАНТАЛАТА ЛИТИЯ С ОТКЛОНЕНИЕМ
ОТ СТЕХИОМЕТРИЧЕСКОГО СОСТАВА

1.3.8. Физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Екатеринбург – 2022

Работа выполнена на кафедре физики конденсированного состояния и наноразмерных систем Института естественных наук и математики ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина».

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, профессор,
Шур Владимир Яковлевич

Официальные оппоненты: **Кащенко Михаил Петрович**,
доктор физико-математических наук, профессор,
ФГБОУ ВО «Уральский государственный лесотех-
нический университет», г. Екатеринбург, заведую-
щий кафедрой общей физики;

Кострицкий Сергей Михайлович,
доктор физико-математических наук, доцент,
ООО Научно-Производственная Компания
«Оптолинк», г. Москва, Зеленоград, технический
директор Зеленоградского отделения;

Шнайдштейн Илья Владимирович,
кандидат физико-математических наук, ФГБОУ ВО
«Московский государственный университет имени
М.В. Ломоносова», физический факультет, доцент
кафедры общей физики и физики конденсирован-
ного состояния

Защита состоится «23» сентября 2022 г. в 15:00 ч на заседании диссертационного совета **УрФУ 1.3.02.06** по адресу: 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, д. 19, ауд. И-420 (зал Ученого совета).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина» <https://dissovet2.urfu.ru/mod/data/view.php?d=12&rid=3769>

Автореферат разослан «___» _____ 2022 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета

Ищенко Алексей Владимирович

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования и степень её разработанности

В настоящее время широкое распространение получило применение сегнетоэлектрических материалов. Они используются в микроэлектронике, нелинейно-оптических устройствах, пьезоэлектрических и пьезоэлектрических преобразователях. Особую роль в применении сегнетоэлектриков играет возможность контролируемого изменения доменной структуры (ДС). Изучение процессов формирования и эволюции сегнетоэлектрических доменов позволяет разрабатывать методы создания ДС с заданными параметрами, что представляет особый интерес для развития нанодоменной инженерии [1,2].

Высокое качество сегнетоэлектрических кристаллов ниобата лития (LiNbO_3 , LN) и танталата лития (LiTaO_3 , LT) в совокупности со сравнительно простой ДС с 180° доменными стенками и высокой температурой сегнетоэлектрического фазового перехода позволяет использовать их в качестве модельных объектов для изучения эволюции ДС с использованием современных экспериментальных методов с высоким пространственным и временным разрешением [3].

Значительное влияние на физические свойства LN и LT оказывает отклонение от стехиометрического состава (50 мол.% Li_2O). Кристаллы, выращенные в промышленных масштабах методом Чохральского, обладают конгруэнтным составом со значительным дефицитом лития ($\sim 48,5$ мол.% Li_2O). Выращивание кристаллов стехиометрического состава является сложной технологической задачей [4]. Альтернативным методом получения кристаллов стехиометрического состава является продолжительный отжиг при высокой температуре в насыщенных парах лития пластин конгруэнтных LN и LT [5,6]. Этот метод позволяет также создавать градиентное распределение концентрации лития, приводящее к образованию встроенных внутренних полей и заряженных доменных стенок в объеме кристалла [7].

Формирование и эволюция ДС в пространственно неоднородных условиях является важной фундаментальной задачей, поскольку процесс переключения поляризации может рассматриваться как аналог фазового перехода первого рода.

Цели и задачи исследования

Цель работы – изучение исходной доменной структуры и её эволюции при переключении поляризации в кристаллах ниобата лития и танталата лития с пространственно-неоднородными отклонениями от стехиометрического состава.

Основные задачи:

1. Разработать методику контролируемого изменения пространственного распределения отклонения от стехиометрического состава в пластинах ниобата лития и танталата лития.
2. Исследовать зависимость параметров исходной доменной структуры в ниобате лития и танталате лития от пространственного распределения состава.
3. Исследовать эволюцию исходной доменной структуры в танталате лития с неоднородным пространственным распределением состава при приложении внешнего электрического поля.

4. Исследовать формирование доменной структуры на неполярном срезе в ниобате лития при локальном переключении поляризации.

5. Исследовать электромеханические характеристики актюаторов на основе бидоменных пластин танталата лития и ниобата лития.

Научная новизна

- Продемонстрирована возможность управления пространственным распределением состава в LN и LT за счет изменения параметров отжига в шихте и на воздухе, что позволило создавать исходную ДС с полидоменным слоем или с заряженной доменной стенкой в области изменения знака градиента состава.

- Показано, на примере LN, что шероховатость заряженных доменных стенок, образующихся в результате фазового перехода, зависит от величины изменения градиента состава в области ее локализации.

- Выявлен и изучен эффект образования выступов на заряженной доменной стенке в LT под действием пьезоэлектрического поля в процессе охлаждения после фазового перехода.

- Получена зависимость формы сечения от состава в LT на основании анализа изменения с глубиной сечения изолированного домена от шестиугольного к треугольному.

- Впервые обнаружен процесс образования и роста выступов на заряженной доменной стенке в LT и их рост к полярной поверхности в постоянном поле.

- Выявлены основные этапы эволюции ДС на полярной поверхности при распаде заряженной доменной стенки в LT, включающие формирование и распад лабиринтовой ДС.

- Впервые измерены зависимости размеров клиновидных доменов от параметров переключения и состава при локальном переключении на неполярном срезе в широком диапазоне составов в LN.

- Выявлена зависимость электромеханического коэффициента передачи бидоменного актюатора от толщины заряженной доменной стенки и разработана технология создания бидоменного актюатора с плоской доменной стенкой методом термодиффузионного сращивания монодоменных пластин.

Теоретическая значимость исследования

1. Показано, что шероховатость заряженных доменных стенок, образующихся в результате фазового перехода, в сегнетоэлектрике с неоднородным составом зависит от величины изменения градиента состава в области ее локализации.

2. Выявлен и изучен эффект переключения в объеме сегнетоэлектрика за счет образования выступов на заряженной доменной стенке и их роста к полярной поверхности под действием пьезоэлектрического поля в процессе охлаждения после фазового перехода и внешнего электрического поля.

3. Выявлены основные этапы роста доменов на полярной поверхности при распаде заряженной доменной стенки и обнаружен процесс формирования и распада лабиринтовой ДС.

Практическая значимость исследования

1. Разработанные методики управления пространственным распределением состава в LN и LT за счет изменения параметров отжига в шихте и на воздухе,

представляют значительный практический интерес для развития методов доменной инженерии, в частности для создания бидоменных актюаторов.

2. Измеренные зависимости от состава формы доменов и их прорастания в полярном направлении представляют интерес создания ДС заданной геометрии.

3. Оригинальная методика создания бидоменного актюатора методом термодиффузионного сращивания монодоменных пластин позволила получить линейную безгистерезисную субнанометровую точность перемещения.

Объекты исследования

- Монокристаллические пластины полярного Z-среза LT толщиной 0,5 мм с пространственно неоднородным составом, полученным методом отжига в шихте.
- Монокристаллические пластины полярного (Z) толщиной 0,5 мм и неполярного (Y) срезов LN с пространственно неоднородным составом полученным методом отжига в шихте и на воздухе.

Методология и методы исследования

Исследование ДС в пластинах с пространственно неоднородным отклонением состава от стехиометрического состава проводилось с использованием современного аналитического оборудования. Визуализация статической ДС, выявленной после селективного химического травления, осуществлялось с помощью оптической микроскопии, а также сканирующей электронной микроскопии (СЭМ). Неразрушающая визуализация ДС на поверхности выполнялась с использованием сканирующей зондовой микроскопии пьезоэлектрического отклика (СМПО). Визуализация доменов в объеме проводилась с использованием конфокальной микроскопии комбинационного рассеяния света (КМКР) и микроскопии генерации второй гармоники Черенкова (МГВГ). *In situ* визуализация эволюции ДС выполнялась на оптическом поляризационном микроскопе с высокоскоростной камерой. Пространственное распределение состава в исследуемых пластинах было охарактеризовано с помощью КМКР.

Положения, выносимые на защиту:

1. Шероховатость заряженной доменной стенки, образующейся в LN в результате фазового перехода, обусловлена величиной пространственного распределения градиента состава, созданного с помощью отжига в шихте и на воздухе.

2. Образование выступов на заряженной доменной стенке в LT определяется воздействием пьезоэлектрического поля, возникающего при охлаждении после фазового перехода.

3. Изменение формы сечения цилиндрических доменов с глубиной в LT обусловлено пространственно неоднородным распределением состава.

4. Образование и рост к полярной поверхности выступов на заряженной доменной стенке в LT во внешнем постоянном электрическом поле представляет собой процесс переключения за счет формирования ступеней на стенке.

5. Зависимости от параметров переключения и состава размеров клиновидных доменов, образующихся при локальном переключении на неполярном срезе в LN

объяснены в рамках кинетического подхода за счет генерации ступеней и последующего роста кинков.

6. Выявлена зависимость электромеханического коэффициента передачи бидоменного актюатора от толщины заряженной доменной стенки и разработана технология создания бидоменного актюатора с плоской доменной стенкой методом термодиффузионного сращивания монодоменных пластин.

Апробация результатов

Основные результаты работы были представлены на 12 российских и международных конференциях и симпозиумах: (1) 8 Int. Conference "Piezoresponse Force Microscopy and Nanoscale Phenomena in Polar Materials" with Int. Youth Conference "Functional Imaging of Nanomaterials" (PFM-2014, Екатеринбург, Россия, 2014); (2) Sino-Russian ASRTU Symposium on Advanced Materials and Processing Technology, (Guangzhou, 2018); (3) XIX Всероссийская школа-семинар по проблемам физики конденсированного состояния вещества (СПФКС–19, Екатеринбург, 2018); (4) VI Международная молодежная научная конференция «Физика. Технологии. Инновации» (ФТИ-2019, Екатеринбург, 2019); (5) Joint International Conference "Scanning Probe Microscopy 2019" (SPM-2019-RCWDFM, Екатеринбург, 2019); (6) XX Юбилейная Всероссийская школа-семинар по проблемам физики конденсированного состояния вещества (СПФКС–20, Екатеринбург, 2019); (7) VII Международная молодежная научная конференция, посвященная 100-летию Уральского федерального университета Физика. Технологии. Инновации. (ФТИ-2020, Екатеринбург 2020); (8) Международная онлайн-конференция «Исследование сегнетоэлектрических материалов российскими учеными. Столетие открытия сегнетоэлектричества» (СЭ-100, Екатеринбург, 2020); (9) VIII Международная молодежная научная конференция, Физика. Технологии. Инновации. (ФТИ-2021, Екатеринбург 2021); (10) XXII Всероссийская конференция по физике сегнетоэлектриков (ВКС-XXII, Екатеринбург, 2021), (11) Десятый международный молодежный симпозиум «Физика бессвинцовых пьезоактивных и родственных материалов. Моделирование эко-систем» (LFPM 2021, Ростов-на-Дону, 2021), (12) IX Международная молодежная научная конференция, Физика. Технологии. Инновации. (ФТИ-2022, Екатеринбург 2022).

Публикации и личный вклад автора.

Основные результаты опубликованы в 24 печатных работах в том числе в 7 статьях в рецензируемых научных журналах, определенных ВАК РФ и Аттестационным советом УрФУ и входящих в международные базы цитирования Scopus и WoS, в 16 тезисах международных и всероссийских конференций и одном патенте на изобретение. Диссертационная работа выполнена с использованием оборудования Уральского центра коллективного пользования «Современные нанотехнологии» Института естественных наук и математики УрФУ в рамках исследований, проводимых при поддержке РФФИ (грант 19-32-90050\19 Аспиранты).

Основные результаты были получены лично автором или при его активном участии. Выбор направления исследований, обсуждение результатов и формулировка задач проводились совместно с научным руководителем д.ф.-м.н., профессором В. Я. Шуром и к.ф.-м.н., с.н.с. В. И. Пряхиной. Изготовление образцов, визуализация ДС методами оптической микроскопии и КМКР, исследование

параметров ДС, анализ и обработка результатов проводились лично автором. Визуализация ДС методом СЭМ – совместно с к.ф.-м.н., с.н.с. В. И. Пряхиной, локальное переключение поляризации и визуализация ДС методом СМПО – совместно с к.ф.-м.н., н.с. А. П. Турыгиным, Визуализация ДС методом МГВГ – совместно с н.с. М. С. Небогатиковым. Переключение поляризации: в однородном поле – совместно с к.ф.-м.н., м.н.с. М. А. Чуваковой, к.ф.-м.н., м.н.с. А. Д. Ушаковым.

Структура и объем диссертации

Диссертационная работа состоит из введения, 7 глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений и списка литературы. Общий объем работы составляет 110 страниц, включая 63 рисунка, 4 таблицы, список литературы из 138 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность темы научно-квалификационной работы и степень ее разработанности, сформулирована основная цель и задачи работы, изложены положения, выносимые на защиту, определены объекты исследования, показаны научная новизна результатов, теоретическая и практическая значимость проведенных исследований, описаны методология и методы исследования. Представлены сведения о достоверности и апробации результатов, о публикациях и личном вкладе автора.

Первая глава является обзорной. В ней приведены основные определения и понятия физики сегнетоэлектриков, рассматривается современное состояние представлений об формировании и эволюции ДС во внешнем электрическом поле и исследовании механизмов экранирования. Описаны основные физические свойства, особенности ДС и интегральные характеристики в исследуемых материалах - одноосных сегнетоэлектриков LN и LT конгруэнтного и стехиометрического состава. Рассмотрены основные современные методы визуализации ДС на поверхности и в объеме сегнетоэлектриков.

Вторая глава является методической и содержит основные характеристики исследуемых образцов, описание экспериментальных установок и методик.

Для проведения отжига в шихте были использованы вырезанные перпендикулярно полярной оси пластины конгруэнтных LN (SIPAT Co., Китай) и LT (Oxide corp., Япония) размерами $10 \times 15 \times 1 \text{ мм}^3$ и $10 \times 15 \times 0,5 \text{ мм}^3$, соответственно, с отполированными до оптического качества полярными поверхностями. Различные пространственные распределения состава создавались за счет изменения температуры и длительности отжига.

Изменение пространственного распределения состава в пластинах LT и LN

Изменение пространственного распределения состава производилось с помощью высокотемпературного отжига в печи LHT 01/17D (Nabertherm, Германия) в корундовых тиглях с обогащенной литием шихтой различных составов. Для LN: шихта – 60 мол.% Li_2CO_3 + 40 мол.% Nb_2O_5 , $T = 1050^\circ\text{C}$, длительность от 10 до 100 ч (Рисунок 1а) – образцы LN10-LN100. Для LT: три режима отжига в шихте 60 мол.% Li_2CO_3 + 40 мол.% Ta_2O_5 : (1) $T = 1100^\circ\text{C}$, длительность от 20 до 50 ч

(Рисунок 1б) – образцы LT20-LT50, (2) медленное охлаждение от $T = 1300^{\circ}\text{C}$ до 1100°C - образцы LT0, (3) $T = 1300^{\circ}\text{C}$, длительность 1-2 ч, медленное охлаждение до $T = 1100^{\circ}\text{C}$, длительность 12-24 ч (Рисунок 1в) - образцы LT1-12 и LT2-24. $dT/dt = 1^{\circ}\text{C}/\text{мин}$, при медленном охлаждении $dT/dt = 0,3^{\circ}\text{C}/\text{мин}$.

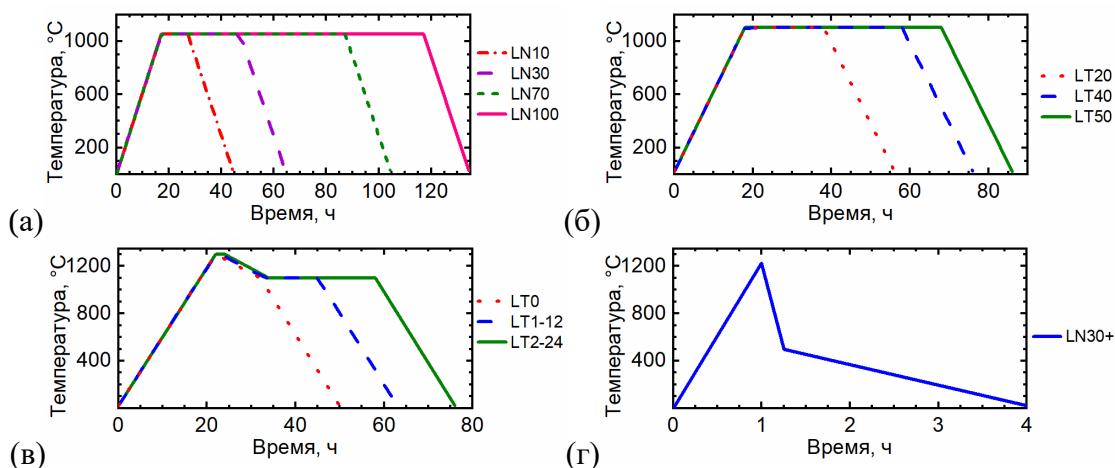


Рисунок 1 – Температурные профили отжигов пластин LN и LT: (а-в) в шихте и (г) на воздухе, (а) LN10-LN100, (б) LT20-LT50, (в) LT0, LT1-12, LT2-24, (г) LN30+.

Кроме того, для исследования формирования ДС при фазовом переходе в LN пластину после отжига в шихте при $T = 1050^{\circ}\text{C}$ длительностью 30 ч нагревали на воздухе выше температуры фазового перехода $T = 1225^{\circ}\text{C}$ при $dT/dt = 20^{\circ}\text{C}/\text{мин}$ и охлаждали до $T = 500^{\circ}\text{C}$ при $dT/dt = 50^{\circ}\text{C}/\text{мин}$ и далее до комнатной температуры при $dT/dt = 3^{\circ}\text{C}/\text{мин}$ (Рисунок 1г) – образец LN30+.

Измерение пространственного распределения состава

Измерение пространственного распределения состава, основанное на зависимости спектров комбинационного рассеяния света LN и LT от отклонения состава от стехиометрического Δc_{Li} [8,9], производилось методом КМКР с помощью Alpha 300 AR (WiTec, Германия). Для калибровки использовались однородные образцы конгруэнтных и стехиометрических LT и LN. Была определена зависимость от Δc_{Li} ширины на полувысоте (FWHM) спектральной линии $E(\text{TO}_1)$.

Измерение распределения Δc_{Li} вдоль полярного направления выполнялось на неполярных Y-срезах LN и LT [A2, A4]. Лазерный луч с длиной волны 488 нм в $Y(\text{ZX})\bar{Y}$ геометрии был сфокусирован на поверхность объективом $\times 10$ ($\text{NA} = 0.2$). Результаты измерений для всех исследованных образцов представлены на Рисунке 2.

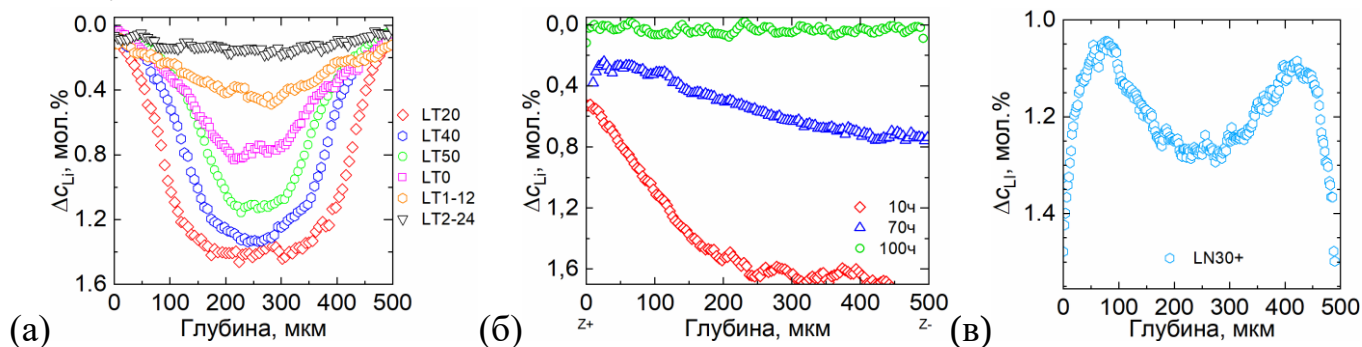


Рисунок 2 – Пространственное распределение Δc_{Li} в образцах с различными параметрами отжига в шихте: (а) LT и (б) LN и (в) LN после дополнительного отжига на воздухе.

Визуализация доменной структуры

Статическая ДС на поверхности образцов визуализировалась методом СМПО с помощью зондовой нанолaborатории Ntegra Aura (НТ-МДТ, Россия) с разрешением 30 нм, а также после селективного химического травления в HF (5 мин) оптической микроскопией с использованием оптического микроскопа ВХ-61 (Olympus, Япония) с разрешением до 500 нм и СЭМ с использованием электронного микроскопа Merlin (Carl Zeiss, Германия) с разрешением до 10 нм. Визуализация ДС в объеме производилась методами: МГВГ [10] с использованием установки, изготовленной на базе Ntegra Spectra (NT-MDT, Россия) с разрешением до 1 мкм и КМКР с помощью конфокального микроскопа комбинационного рассеяния Alpha 300 AR, (WiTec, Германия) с разрешением до 300 нм. *In situ* визуализация эволюции ДС при переключении поляризации производилась оптическим поляризационным микроскопом LMA10 (Carl Zeiss, Германия) с высокоскоростной видеокамерой Mini UX100 (Photron Ltd., Япония), синхронизированной с импульсами поля.

Распад исходной доменной структуры в LT в однородном поле при повышенной температуре

Для изучения эволюции исходной ДС образец с прозрачными ITO электродами нагревался до 350°C в термоячейке THMS 600 (Linkam SI, Великобритания). Переключение поляризации производилось прямоугольными импульсами поля амплитудой 1-2 кВ/мм и длительностью 10-40 с, полученными при помощи платы сбора данных NI-6251 (National instruments, США) и высоковольтного усилителя TREK 20/20с (TREK, США). *In situ* визуализация эволюции ДС производилась в проходящем свете с помощью оптического поляризационного микроскопа LMA10. Последовательность мгновенных изображений регистрировалась высокоскоростной камерой Mini UX100. Скорости нагрева и охлаждения составляли 5°C/мин.

Для изучения распада исходной ДС в переменном поле к образцам со сплошными электродами из серебряной пасты, нагретым до 350°C в течение 1-3 часов прикладывались биполярные треугольные импульсы поля амплитудой 3 кВ/мм и частотой 10°Гц. После обработки образцы охлаждались до комнатной температуры без поля. Скорости нагрева и охлаждения составляли 10°C/мин.

Локальное переключение поляризации в LN на неполярном срезе

Для изучения зависимости роста доменов в полярном направлении от состава производилось локальное переключение поляризации с помощью проводящего зонда сканирующего зондового микроскопа NTEGRA Aura (НТ-МДТ, Россия) импульсами длительностью от 10 мс до 100 с и амплитудой от 40 до 200 В. Все эксперименты выполнялись при комнатной температуре в потоке азота с относительной влажностью 15%. Использовался зонд NSC18 с проводящим покрытием из Pt (MikroMasch, Болгария) и радиусом закругления 30 нм.

Измерение электромеханических характеристик бидоменных актюаторов

Производилось изучение электромеханических характеристик бидоменных актюаторов, изготовленных из образцов LT0, LT1-12, LT2-24 с заряженной доменной стенкой размерами 1×5×0,5 мм³ и полученных термодиффузионным сращиванием монодоменных пластин конгруэнтного LN Y+128° с противоположным

направлением спонтанной поляризации (P_s) размерами $25 \times 3 \times 1$ мм³. Измерение электромеханических характеристик осуществлялось с помощью: (1) установки для измерения пьезоэлектрических свойств TFAalyzer 2000 E (aixACCT, Германия) с интерферометром Sios SP-S 120E и (2) зондовой нанолаборатории ИНТЕГРА-Терма (НТ-МДТ, Россия) в режиме постоянной силы с использованием зондового датчика CSG-01.

Третья глава посвящена исследованию заряженных доменных стенок, образующихся при фазовом переходе в одноосном сегнетоэлектрике с градиентами состава.

При фазовом переходе в образцах с неоднородным составом в области изменения знака градиента состава образуются заряженные доменные стенки. В LN отжиг в шихте проводился всегда в сегнетоэлектрической фазе, поэтому для получения заряженных доменных стенок проводился дополнительный нагрев образца на воздухе выше температуры фазового перехода и последующее охлаждение (Рисунок 3). Нагрев на воздухе приводил к значительному увеличению ΔC_{Li} в приповерхностных слоях (Рисунок 2в) и образованию двух дополнительных областей со сменой знака градиента состава (Рисунок 4а). В результате при фазовом переходе в образце LN30+ образовались три заряженные доменные стенки: две голова-к-голове и одна хвост-к-хвосту (Рисунок 4б).

Для исследования формы образующихся при фазовом переходе заряженных доменных стенок, необходимо, чтобы она не изменялась при охлаждении от температуры фазового перехода до комнатной температуры под действием пироэлектрического поля. То есть при охлаждении должно выполняться условие $E_{\text{пир}}(T) - E_{\text{th}}(T) < 0$, где $E_{\text{пир}}(T)$ – пироэлектрическое поле, $E_{\text{th}}(T)$ – пороговое поле формирования выступов на заряженной доменной стенке. Это условие удастся выполнить только в LN, благодаря большим, по сравнению с LT, величинам ΔC_{Li} (Рисунок 2а,в) и порогового поля, а также более чем в три раза меньшего пироэлектрического коэффициента [11,12].

Экспериментально показано, что в образцах LN, в отличие от LT, при охлаждении от температуры фазового перехода не образовывалось конических выступов на заряженных доменных стенках, под действием пироэлектрического поля (Рисунок 3).

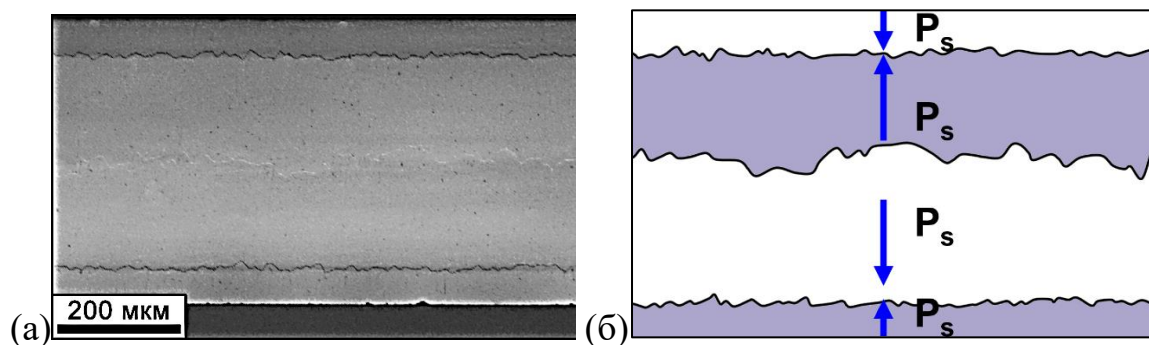


Рисунок 3 – (а) Оптическое изображение исходной ДС с заряженными доменными стенками на Y-срезе образца LN30+ после селективного травления, (б) схема ДС.

Форма заряженных доменных стенок характеризовалась величинами «шероховатости»: R_a – среднее арифметическое абсолютных значений отклонений

профиля в пределах базовой длины, R_z – сумма средних абсолютных значений высот наибольших выступов профиля и глубин наибольших впадин профиля в пределах базовой длины.

$$R_a = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |Z_i|, \quad (1)$$

где N – количество точек профиля, Z_j – отклонение точки.

$$R_z = \frac{1}{N} [\sum_{i=1}^N H_{max.i} - \sum_{i=1}^N H_{min.i}], \quad (2)$$

где $H_{max.i}$ и $H_{min.i}$ – высоты наибольших выступов и глубины наибольших впадин профиля, соответственно.

Для заряженных доменных стенок типа голова-к-голове $R_a = 8,4 \pm 1,7$ мкм, $R_z = 12,7 \pm 2,7$ мкм, а для заряженной доменной стенки хвост-к-хвосту $R_a = 17,0 \pm 4,8$ мкм, $R_z = 23,0 \pm 8,4$ мкм.

Меньшая шероховатость заряженных доменных стенок, расположенных вблизи полярных поверхностей, по сравнению со стенкой в центре образца LN30+, показывает, что амплитуда шероховатости увеличивается при уменьшении изменения градиента состава в области локализации стенки (Рисунок 4а), что открывает возможность для контроля шероховатости заряженной доменной стенки в бидоменном кристалле [13].

Проведенный анализ оптических изображений нескольких изолированных доменов на полярной поверхности образца LN30+ позволил выявить два типа доменов (Рисунок 6а). Сечение гексагональных доменов с помощью КМКР показало, что они растут от поверхности в глубину с уменьшением поперечного размера (Рисунок 5б), то есть имеют традиционную форму доменов, образующихся на полярной поверхности при переключении внешним полем. Контраст стенок в объеме при наблюдении методом КМКР вызван локальным полем на отклоненных от полярного направления доменных стенок [14]. Для круглых доменов наблюдался необычный контраст доменных стенок только вблизи полярной поверхности (Рисунок 5б). Такое anomальное КМКР изображение можно отнести за счет формирования цилиндрического выступа на заряженной доменной стенке, который пророс до

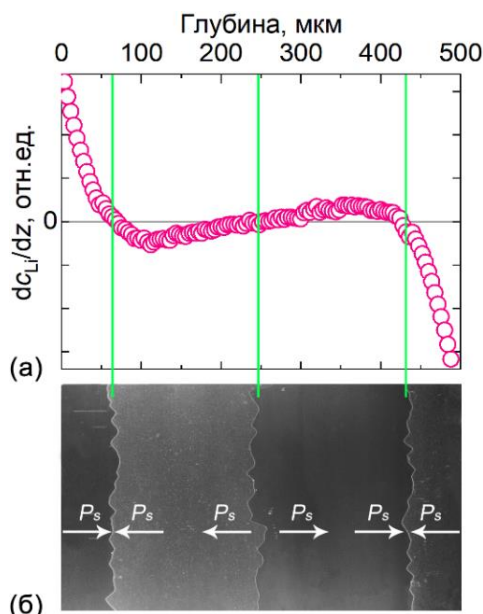


Рисунок 4 – (а) Пространственное распределение градиента состава вдоль полярной оси dC_{Li}/dz в образце LN30+, (б) Оптическое изображение заряженных доменных стенок на Y-срезе, выявленных травлением.

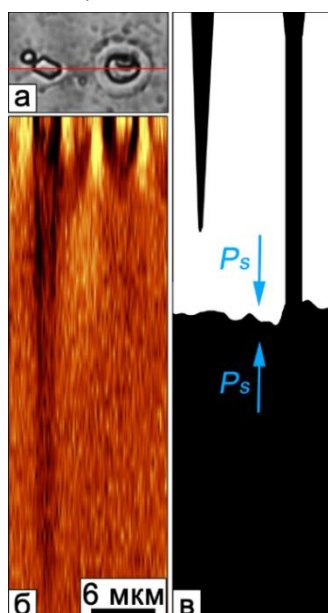


Рисунок 5 – (а) Оптическое изображение двух типов доменов в образце LN30+, выявленных травлением на полярной поверхности, (б) КМКР изображение сечения этих доменов, (в) схема ДС.

полярной поверхности (Рисунок 5в). При этом нейтральная доменная стенка остается невидимой и удастся наблюдать только вершину выступа с отклонением стенки от полярной оси (Рисунок 5б,в).

Четвертая глава посвящена исследованию исходной доменной структуры, образующейся при фазовом переходе и изменяющейся при последующем охлаждении в одноосном сегнетоэлектрике с градиентами состава.

Исследования проводились в кристаллах LT, в которых, в отличие от LN, отжиг в шихте всегда проводился в параэлектрической фазе с последующим фазовым переходом и охлаждением до комнатной температуры без поля, что как правило приводило к образованию сложной исходной ДС. Вблизи полярных поверхностей формировались монодоменные слои с противоположным направлением P_s , содержащие незначительную концентрацию изолированных доменов в монодоменной матрице (Рисунок 6). В зависимости от распределения Δc_{Li} вдоль полярной оси образуются два типа исходной ДС, которые различаются наличием в центре пластины: (1) полидоменного слоя ограниченного двумя заряженными доменными стенками (Рисунок 6а-в,д), или (2) одной заряженной доменной стенкой (Рисунок 9).

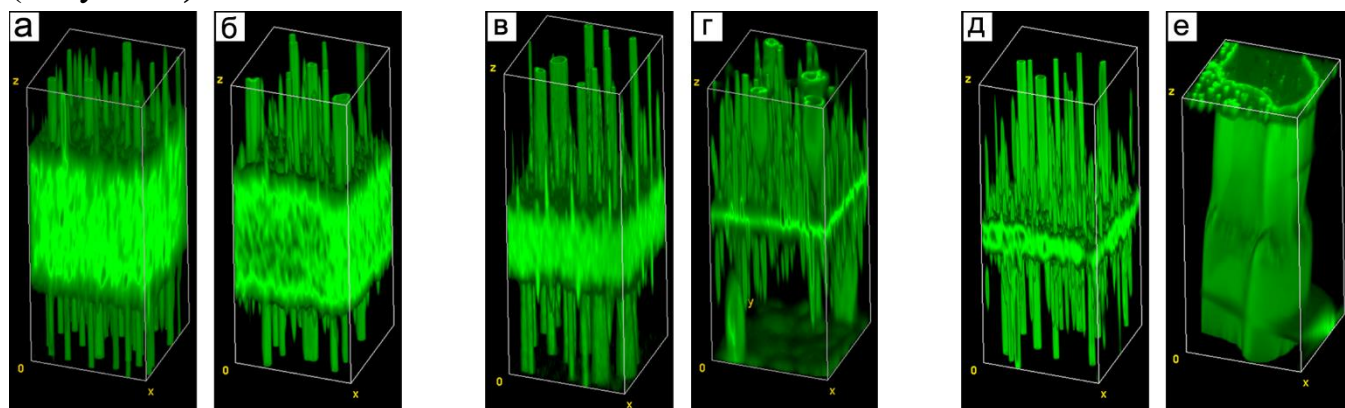


Рисунок 6 – 3D МГВГ изображения исходной ДС до (а,в,д) и после (б,г,е) приложения переменного поля для образцов: (а,б) LT20, (в,г) LT40, (д,е) LT50. Размеры изображений $65 \times 65 \times 500 \text{ мкм}^3$. Амплитуда 3 кВ/мм, длительность приложения поля 3 ч, температура 350°C .

Исходная доменная структура с полидоменным слоем

После отжига LT в шихте, длительность которого недостаточна для получения однородного состава во всем объеме образца, в центральной части с однородным Δc_{Li} образуется полидоменный слой, а в приповерхностных областях с градиентом состава dc_{Li}/dz - монодоменные слои. Следует отметить, что локальное направление поляризации при фазовом переходе определяется знаком dc_{Li}/dz , играющего роль связанного внутреннего поля [15,16]. Различное направление dc_{Li}/dz вблизи полярных поверхностей приводит к образованию монодоменных слоев с различным знаком P_s . Сравнение распределения градиента состава dc_{Li}/dz (Рисунок 7а-в) и изображения ДС на Y-срезе (Рисунок 7г-е) показывает, что полидоменный слой образуется в области с малой величиной dc_{Li}/dz .

Формирующаяся в центре образца трехмерная лабиринтовая полидоменная структура обладает средней концентрацией доменных стенок $c_{dw} = L/A \sim 2.9 \text{ мкм}^{-1}$, где L – полная длина доменных стенок, A – площадь доменов с одним направлением P_s (Рисунок 7ж).

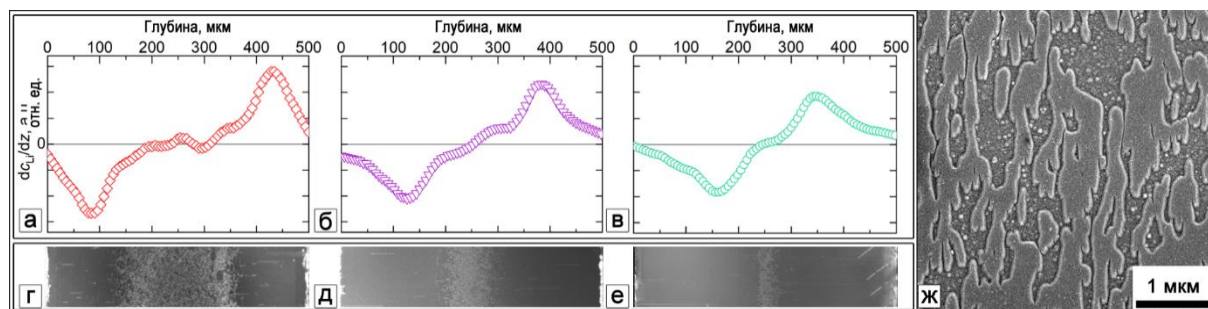


Рисунок 7 – (а-в) Распределение градиента состава вдоль полярной оси, (г-е) оптические и (ж) СЭМ изображения исходной ДС с полидоменным слоем, выявленной травлением, на Y-срезе. Образцы: (а,г,ж) LT20, (б,д) LT40, (в,е) LT50.

От полидоменного слоя растут конические домены (Рисунок 8а,в,д), диаметр которых увеличивается до нескольких микрон при прорастании до полярных поверхностей. Округлая форма доменов на поверхности показывает, что наблюдается оригинальная кинетика роста доменов в объеме (Рисунок 8).

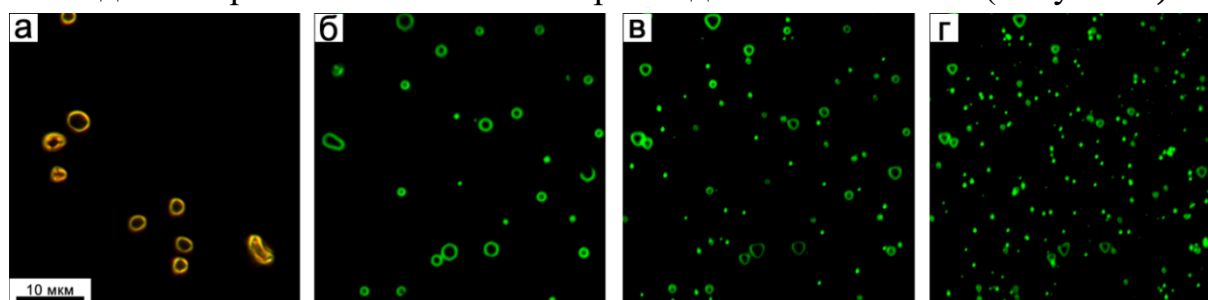


Рисунок 8 – Выступы на заряженной доменной стенке в образце с полидоменным слоем: (а) оптическое изображение доменов на полярной поверхности. МГВГ изображения сечений выступов на разной глубине, мкм: (б) 0, (в) 100, (г) 160. Размеры МГВГ изображений 100×100 мкм². Образец LT40.

Заряженная доменная стенка

Отжиг в шихте при 1300°C позволил уменьшить ΔC_{Li} во всем объеме, что привело к образованию двух монодоменных слоев с разным знаком P_s , разделенных заряженной доменной стенкой типа хвост-к-хвосту (Рисунок 9).

Форма заряженной доменной стенки в LT, в отличие от LN, существенно изменяется при охлаждении после фазового перехода. Под действием пирозлектрического поля формируются растущие к полярным поверхностям конические выступы, то есть при охлаждении $E_{\text{pyr}}(T) - E_{\text{th}}(T) > 0$. Этот процесс приводит к значительному уширению заряженной доменной стенки (Рисунок 9). Часть выступов достигает полярных поверхностей, что приводит к образованию локальных разрывов в заряженной доменной стенке.

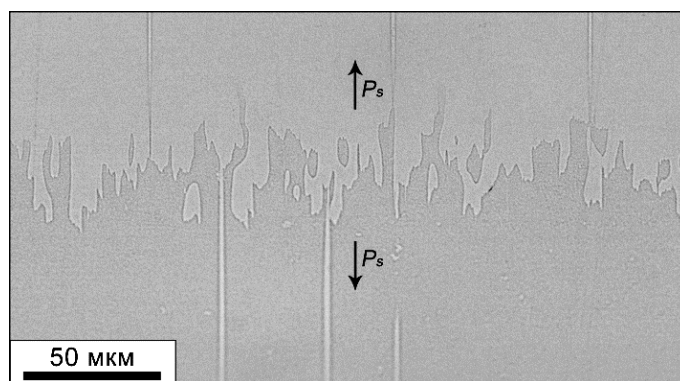


Рисунок 9 – Оптическое изображение выявленной травлением заряженной доменной стенки на Y-срезе в образце LT1-12.

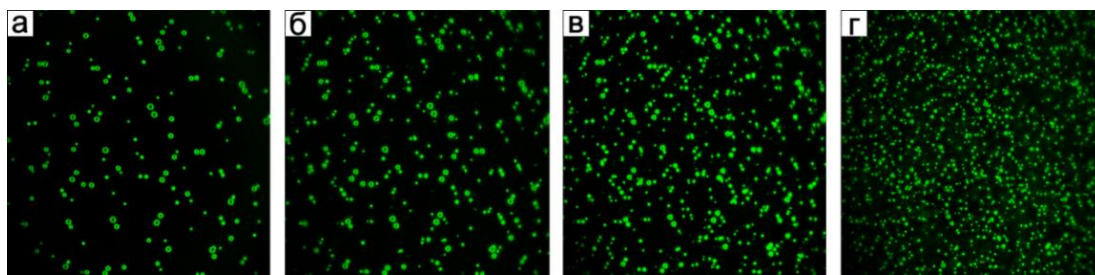


Рисунок 10 – Выступы на заряженной доменной стенке в образце без полидоменного слоя: МГВГ изображения сечений выступов на разной глубине, мкм: (а) 0, (б) 110, (в) 170, (г) 215. Размеры изображений 150×150 мкм². Образец LT0.

Анализ МГВГ изображений сечений выступов на разной глубине от поверхности l (Рисунок 10) позволил определить зависимости количества сечений на единицу площади от глубины $n_l(l)$ для образцов с различным Δ_{CLi} в области смены знака градиента состава (Рисунок 11), которые аппроксимировали функцией Лоренца

$$n_l(l) = n_{ls} + \frac{2a}{\pi} \frac{w}{4(l-l_c)^2 + w^2} \quad (3)$$

где n_{ls} – количество доменов на единицу площади полярной поверхности, w – эффективная ширина заряженной доменной стенки, l_c – положение середины заряженной доменной стенки, a – коэффициент.

Параметры аппроксимации приведены в Таблице 1. Видно, что n_{lw} , n_{ls} и w увеличиваются с увеличением Δ_{CLi} . Этот факт может быть вызван увеличением концентрации изолированных доменов (фрагментов полидоменного слоя) вблизи заряженной доменной стенки. Вместе с тем средние площади доменов на полярной поверхности s_{ls} и сечений выступов вблизи заряженной доменной стенки s_{lw} уменьшаются с Δ_{CLi} , что обусловлено взаимодействием растущих выступов.

КМКР изображения сечений на разной глубине растущего от полярной поверхности одиночного домена (Рисунок 12) показали изменение формы от шестиугольной, характерной для стехиометрического состава к треугольной, характерной для конгруэнтного состава, что позволило впервые экспериментально получить зависимость формы доменов от состава в LT.

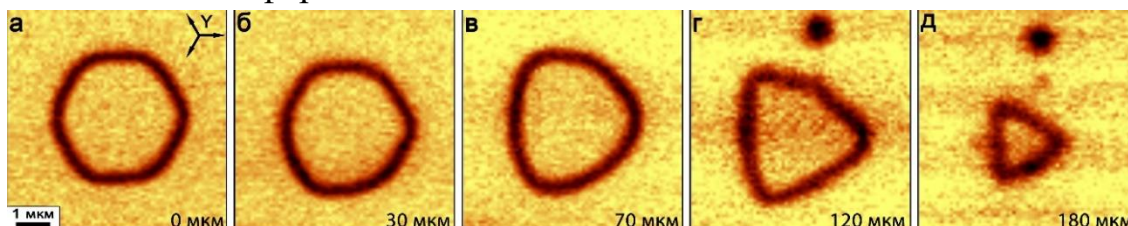


Рисунок 12 – КМКР изображения сечений на разной глубине выросшего от поверхности домена и соответствующие значения Δ_{CLi} , мол.‰: (а) 0, (б) 0,1, (в) 0,2, (г) 0,6, (д) 0,8. Образец LT0.

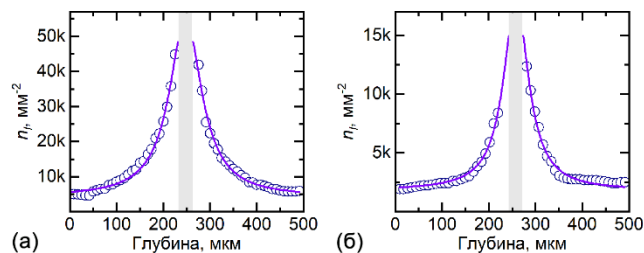


Рисунок 11 – Зависимость от глубины количества сечений выступов на квадратный миллиметр n_l для заряженных доменных стенок с различным Δ_{CLi} в центре образцов, мол.‰: (а) 0,8, (б) 0,1. Образцы: (а) LT0 и (б) LT2-24.

Таблица 1 – Параметры заряженной доменной стенки для образцов с разным Δ_{CLi} .

Образец	LT0	LT2-24
Δ_{CLi} , мол.‰	0,8	0,1
n_{ls} , мм ⁻²	$5,6 \times 10^3$	$2,1 \times 10^3$
n_{lw} , мм ⁻²	49×10^3	15×10^3
s_{ls} , мкм ²	5,4	6,8
s_{lw} , мкм ²	3,6	4,5
w , мкм	84	65

Изменение формы сечений домена характеризовалось количественно построением угловых зависимостей в полярных координатах (Рисунок 13а-в), которые аппроксимировались суммой вкладов от треугольника, шестиугольника и окружности (изотропного роста).

Полученные зависимости от состава отдельных вкладов приведены на Рисунке 13г. Видно, что вклад треугольного роста плавно уменьшается при уменьшении Δ_{CLi} за счет увеличения вклада изотропного роста. Гексагональный рост

проявляется только для составов близких к стехиометрическому. Следует отметить, что наблюдавшийся существенный вклад изотропного роста наблюдался ранее при переключении поляризации в ЛТ при повышенных температурах [17].

Пятая глава посвящена распаду исходной доменной структуры в однородном электрическом поле.

Экспериментально исследовалась перестройка исходной ДС в ЛТ с полидоменным слоем и с заряженной доменной стенкой при приложении внешнего переменного и постоянного электрического поля.

Перестройка исходной доменной структуры с полидоменным слоем в результате длительного воздействия переменного поля

Исследовалось влияние внешнего переменного электрического поля при повышенной температуре на исходную ДС в ЛТ. Исходные ДС до и после воздействия переменного поля представлена на Рисунке 6.

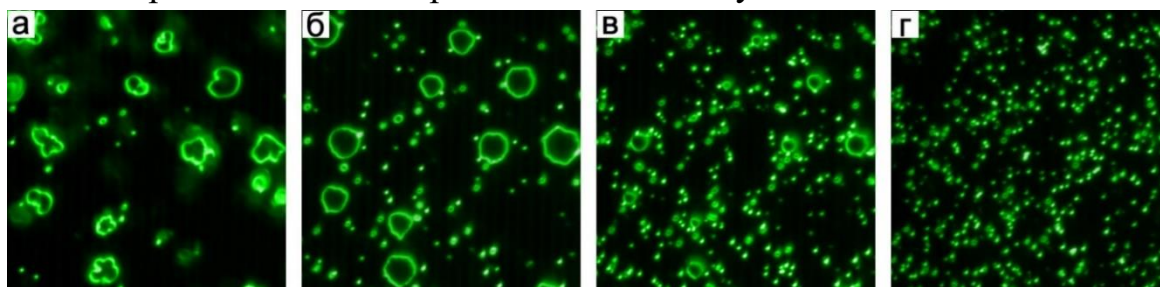


Рисунок 14 – Выступы на заряженной доменной стенке в ЛТ40 с полидоменным слоем после воздействия переменным полем. МГВГ изображения сечений на различных глубинах, мкм: (а) 20, (б) 100, (в) 140, (г) 180. Размер изображения 100×100 мкм². Поле 3 кВ/мм, температура 350°С.

Видно, что результаты воздействия поля существенно зависят от исходной толщины полидоменного слоя. В образце LT20 лишь незначительно уменьшилась толщина слоя (Рисунок 6а,б) и концентрация доменных стенок в нем. В образце LT40 полидоменный слой превращается в заряженную доменную стенку типа хвост-к-хвосту (Рисунок 6в,г), [А3]. На полярной поверхности возникают и растут большие

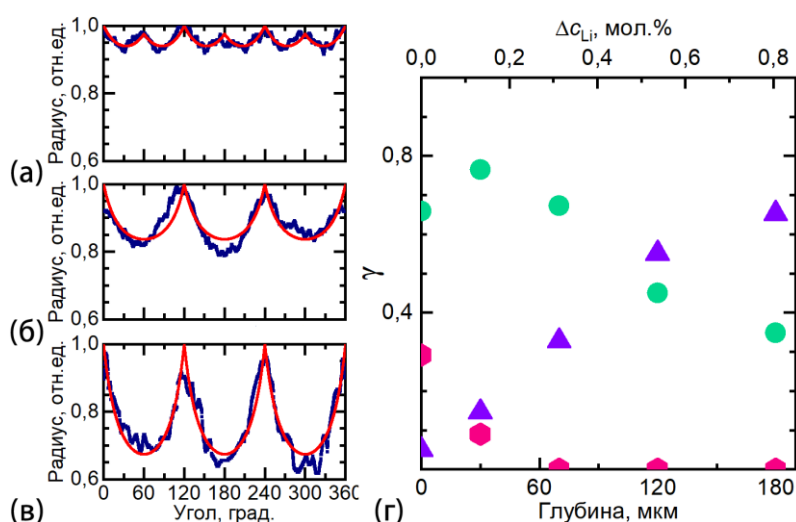


Рисунок 13 – Угловая зависимость формы сечений домена на разной глубине и соответствующие значения Δ_{CLi} , мол. %: (а) 0, (б) 0,2, (в) 0,8, (г) зависимости от глубины и состава вкладов треугольного, гексагонального и изотропного роста. Образец LT0.

конические домены, которые не достигают заряженной доменной стенки (Рисунок 14). Неправильная форма доменов на поверхности обусловлена эффектом коррелированного зародышеобразования – формирования нанодоменов перед движущейся доменной стенкой (Рисунок 15а) [2]. В образце LT50 с тонким полидоменным слоем под действием переменного поля наблюдается значительный распад исходной ДС и образование больших сквозных доменов с наклонными заряженными доменными стенками (Рисунок бд,е), знак наклона которых изменяется в области исходного полидоменного слоя.

Распад заряженной доменной стенки в постоянном поле

При приложении однополярного прямоугольного импульса постоянного электрического поля исследован процесс образования и роста выступов на заряженной доменной стенке в образце LT1-12.

С помощью оптической микроскопии была *in situ* визуализирована кинетика образования и роста доменов на полярной поверхности, вызванная прорастанием выступов, образующихся на заряженной доменной стенке (Рисунок 15).

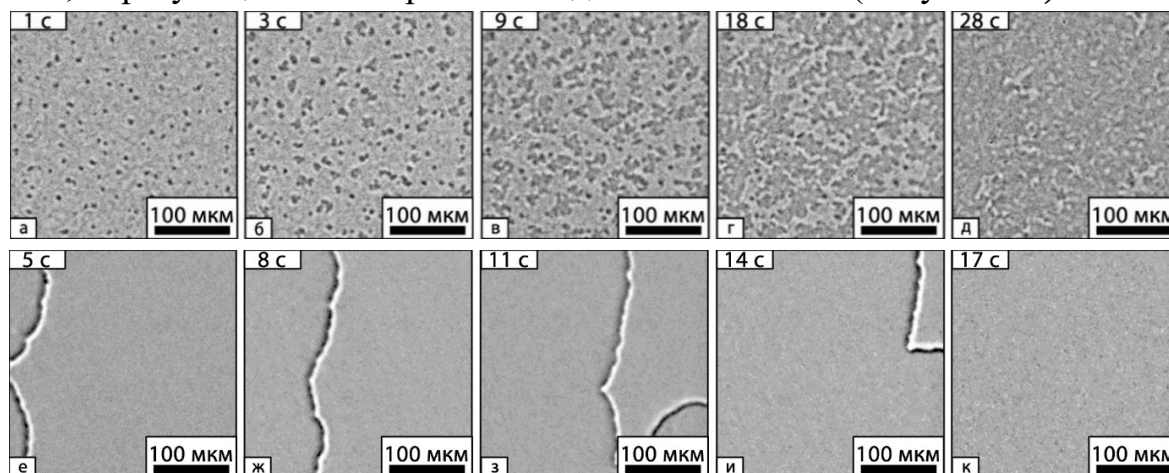


Рисунок 15 – Последовательности *in situ* оптических изображений доменов на полярной поверхности, при переключении образца с заряженной доменной стенкой в постоянном поле. (а-д) Первое и (е-к) повторное переключения. Образец LT1-12. Поле 1,2 кВ/мм, длительность 40 с, температура 350°C.

Видно, что при первом переключении эволюция ДС на полярной поверхности представляет собой (1) образование изолированных доменов диаметром около 10 мкм и концентрацией около $1,5 \times 10^3 \text{ мм}^{-2}$, (2) слияние и рост доменов, (3) эволюция лабиринтовой ДС с периодом 30-50 мкм (Рисунок 15а-д). При втором переключении эволюция ДС качественно изменяется и представляет собой боковое движение доменных стенок, формирующихся вблизи края электродов (Рисунок 15е-к). Наблюдаемые изменения подтверждают полный распад заряженной доменной стенки при первом переключении.

Анализ последовательности мгновенных изображений ДС на полярной поверхности (Рисунок 16) позволил построить зависимость доли площади растущих доменов от времени (Рисунок 17) [18] и позволил выделить три стадии кинетики ДС. Первая стадия представляет собой рост изолированных доменов, быстро проросших к поверхности от заряженной доменной стенки, которая аппроксимировалась модифицированной формулой Колмогорова-Аврами для β -модели с учетом изменения размерности роста (геометрической катастрофы)

от двумерной к одномерной $\beta 2D \rightarrow \beta 1D$ (Уравнение 4) [19]. Вторая стадия, представляет из себя постепенный распад двумерного лабиринта, стабилизированного взаимодействием доменных стенок, за счет разбиения полосовых доменов на изолированные, аппроксимирована уравнением 4 для $\beta 2D$ -модели (Рисунок 16в). Третья стадия вызвана движением макроскопической границы полностью переключенной области (Рисунок 16г).

$$q(t) = 1 - \exp \left[- \left(\frac{t}{t_{0\beta}} \right)^n \left(1 - \frac{t}{t_m} \right) \right], \quad (4)$$

Где q – доля площади растущих доменов, $t_{0\beta}$ – характерное время процесса, t_m – постоянная времени, учитывающая достижение растущими доменами края переключаемой области, n – размерность роста.

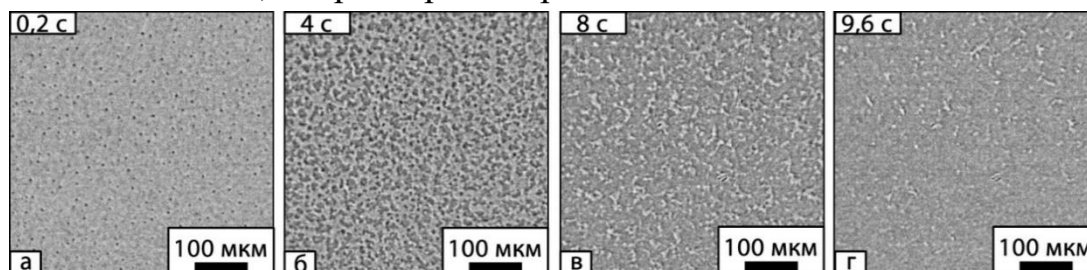


Рисунок 16 – Последовательности *in situ* оптических изображений доменов на полярной поверхности, при переключении образца с заряженной доменной стенкой в постоянном поле. Образец LT1-12. Поле 2 кВ/мм, длительность 15 с, температура 350°C.

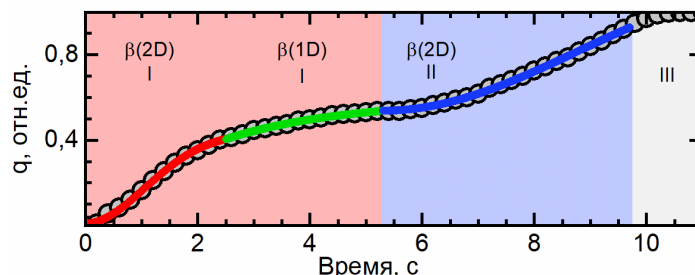


Рисунок 17 – Зависимость от времени доли площади переключенных доменов, аппроксимированная модифицированными формулами Колмогорова-Аврами. Стадии переключения: (I) рост доменов с изменением размерности роста от двумерной к одномерной $\beta 2D \rightarrow \beta 1D$, (II) распад двумерного лабиринта $\beta 2D$ -модель, (III) движение границы полностью переключенной области. Образец LT1-12. Поле 2 кВ/мм, длительность 15 с, температура 350°C.

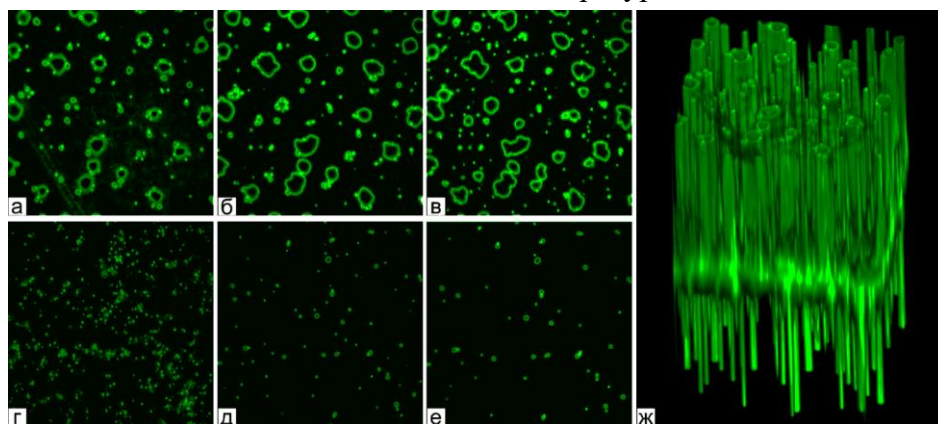


Рисунок 18 – МГВГ изображения ДС после частичного переключения постоянным полем. 2D МГВГ изображения сечений выступов на разной глубине, мкм: (а) 0, (б) 50, (в) 100, (г) 280, (д) 450, (е) 500. Размер изображения 100×100 мкм². (ж) 3D МГВГ изображение ДС. Размеры изображения $100 \times 100 \times 500$ мкм³. Поле 1 кВ/мм, длительность 3 с, температура 350°C.

МГВГ изображения ДС после частичного переключения однополярным прямоугольным импульсом показали, что выступы на заряженной доменной стенке растут в одном направлении, которое определяется направлением поля (Рисунок 18). Зависимость от глубины количества сечений выступов показывает, что увеличение n_{ls} и n_{lw} , происходит только в верхней половине образца (Рисунок 19) и таблица 2.

Таблица 2 – Параметры заряженной доменной стенки в образце LT1-12 после частичного переключения постоянным полем.

Глубина, мкм	0-250	251-500
$n_{ls}, \text{мм}^{-2}$	$7,3 \times 10^3$	$4,5 \times 10^3$
$n_{lw}, \text{мм}^{-2}$	$43,7 \times 10^3$	$28,8 \times 10^3$
$S_{ls}, \text{мкм}^2$	64,4	5,6
$S_{lw}, \text{мкм}^2$	16,8	4,4

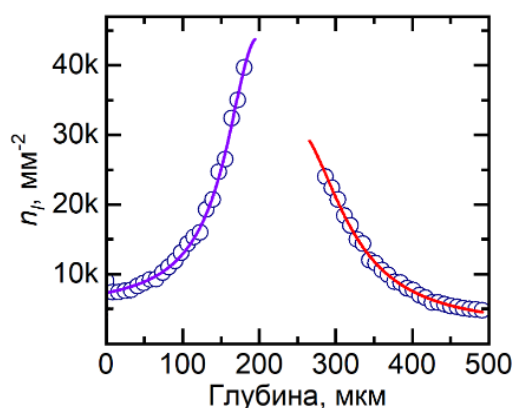


Рисунок 19 – Зависимость от глубины количества сечений выступов на квадратный миллиметр n_l на заряженной доменной стенке после частичного переключения постоянным полем. Поле 1 кВ/мм, длительность 3 с, температура 350°C. Образец LT1-12.

Шестая глава посвящена изучению переключения поляризации в зависимости от состава на неполярном срезе LN.

Локальное переключение поляризации и визуализация ДС на неполярном Y-срезе LN выполнялись с помощью СЗМ в различных областях монокристаллического образца с неоднородным составом. Δc_{Li} изменялась от 0,05 до 1,55 мол.% (Рисунок 20а). Вблизи зонда при приложении положительного импульса возникали и росли в полярном направлении клиновидные домены (Рисунок 20б).

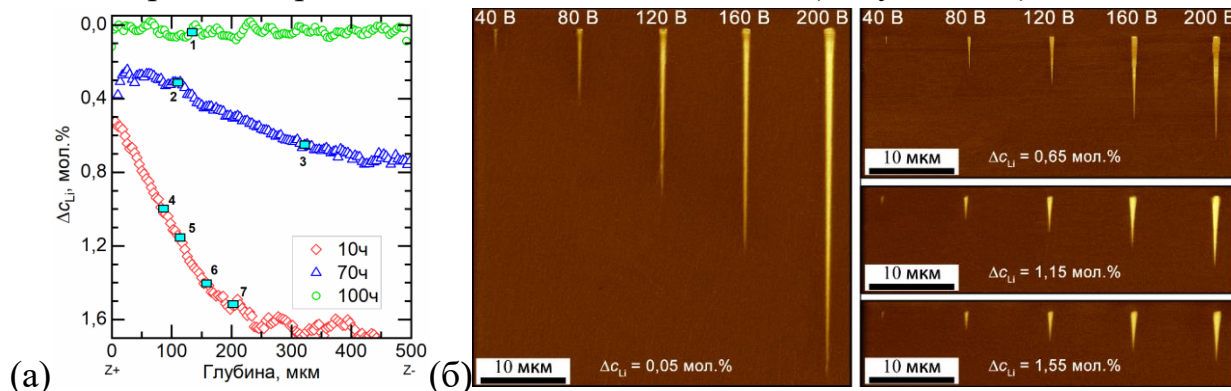


Рисунок 20 – Рост доменов при локальном переключении на неполярном Y-срезе. (а) Пространственное распределение Δc_{Li} вдоль полярной оси, (б) СЗМ изображения доменов для различных Δc_{Li} , мол%: 0,05, 0,65, 1,15, 1,55. Образцы LN10, LN70, и LN100.

Длина доменов линейно зависела от напряжения (Рисунок 21а), а для ширины основания доменов наблюдалась корневая зависимость (Рисунок 21б).

Полученные результаты рассмотрены в рамках кинетического подхода к росту доменов в сегнетоэлектриках [20]. Образование клиновидных доменов обусловлено генерацией ступеней в поле вблизи зонда и движением кинков вдоль стенки в деполяризующем поле, создаваемом заряженными кинками [21]. Скорости роста основания домена и движения кинков определяются превышением локального

значения полярной составляющей электрического поля ($E_{loc.z}$) над пороговыми значениями для генерации ступеней $E_{th.st}$ и движения кинков $E_{th.k}$.

$E_{loc.z}$ представляет собой суперпозицию полярных компонент: (1) поля, создаваемого зондом ($E_{tip.z}$), (2) деполяризующего поля, создаваемого связанными зарядами ($E_{dep.z}$), и (3) быстрого внешнего ($E_{ex.scr.z}$) и медленного объемного ($E_{b.scr.z}$) полей экранирования:

$$E_{loc.z}(r, t) = E_{tip.z}(r, t) + [E_{dep.z}(r, t) - E_{ex.scr.z}(r, t)] - E_{b.scr.z}(r, t) \quad (5)$$

Движение кинков в полярном направлении вдали от зонда определяется полем, создаваемым кинками [22]. Полевая зависимость скорости движения кинков:

$$v_k(E) = \mu_k(E_{loc.z} - E_{th.k}) \quad (6)$$

где μ_k – подвижность кинков.

Увеличение ширины домена (рост основания) при доминирующей роли $E_{tip.z}$ обусловлено генерацией элементарных ступеней высотой равной постоянной решетки LN. При эффективном внешнем экранировании с помощью проводящего зонда и инжектированного заряда, полевая зависимость скорости роста основания:

$$v_b(E) = \mu_b(E_{loc.z} - E_{th.st}) \quad (7)$$

где μ_b – подвижность роста основания домена.

Зависимость ширины основания домена от напряжения, рассчитанная в приближении точечного заряда [23] с поправкой на емкость зонда [24]:

$$w_d(U_{tip}) = k_w \sqrt{U_{tip} - U_{th.st}} \quad (8)$$

где k_w пропорциональна подвижности, $U_{th.st}$ – пороговое поле генерации ступени.

Расстояние между кинками пропорционально напряжению и постоянно вдоль всего домена. Зависимости длины домена от напряжения:

$$L_d(U) = k_l(U - U_{th.k}) \quad (9)$$

где k_l пропорциональна подвижности кинков μ_k .

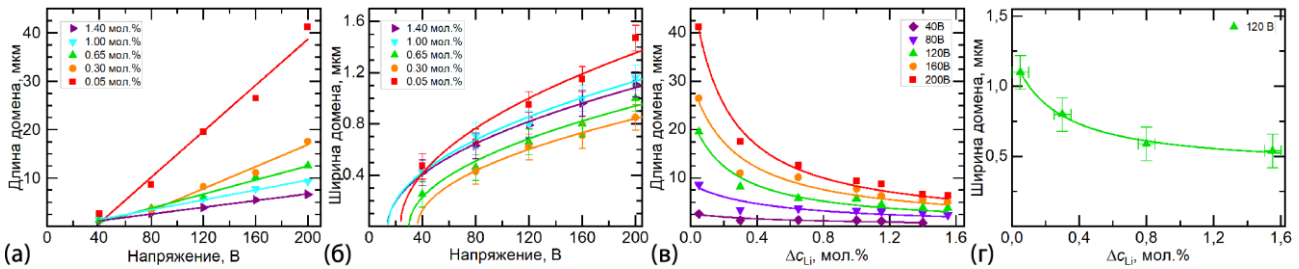


Рисунок 21 – Зависимости размеров доменов: (а,б) от напряжения и (в,г) от Δc_{Li} , (а,в) длины и (б,г) ширины основания домена. Экспериментальные точки аппроксимированы следующими зависимостями: (а) – (9), (б) – (8), (в) – (13), (г) – (14).

В рамках рассматриваемой модели отношение длины к ширине основания домена (AR) эквивалентно средней длине элементарных ступеней L_{step} на Y-срезе:

$$L_{step} = a AR \quad (10)$$

где $a = 5,15 \text{ \AA}$ – постоянная решетки LN.

При равных значениях пороговых полей для генерации ступеней и движения кинков:

$$AR(U) = \frac{L_d(U)}{w_d(U)} = \frac{1}{a} L_{step}(U) = \frac{k_l}{k_w} \sqrt{U - U_{th}} \quad (11)$$

Экспериментальные зависимости $AR(U)$ были успешно аппроксимированы уравнением 11 (Рисунок 23б).

Логарифмическая зависимость ширины основания доменов от длительности импульса типична для роста доменов на неполярном Y-срезе LN. Тогда как длина доменов и отношение длины к ширине основания домена слабо зависит от длительности импульса (Рисунок 22).

Как длина, так и ширина домена существенно уменьшаются с увеличением отклонения от стехиометрического состава (Рисунок 21в,г).

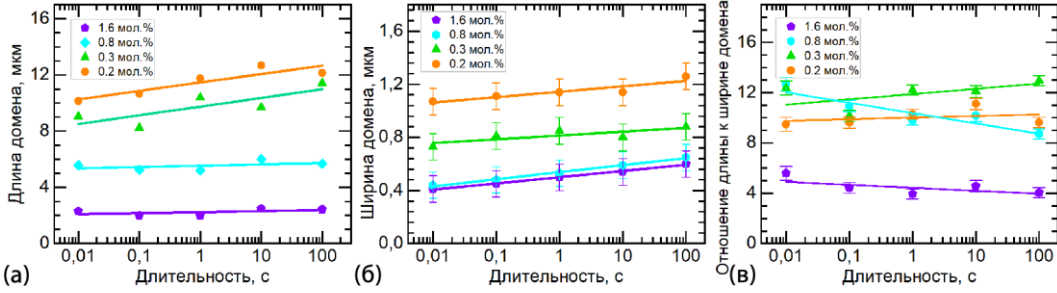


Рисунок 22 – Зависимость размеров домена от длительности импульса для различных Δc_{Li} : (а) длина, (б) ширина основания домена, (в) отношение длины к ширине.

Показано, что зависимость $k_l = dL/dU$ от Δc_{Li} может быть аппроксимирована следующей формулой (Рисунок 23а):

$$k_l(\Delta c_{Li}) = \frac{k}{\Delta c_{Li} + b} + k_{\infty} \quad (12)$$

где $k = 0,053$ мкм/В, $b = 0,18$, $k_{\infty} = 0,004$ мкм/В

Таким образом зависимость длины домена от Δc_{Li} может быть аппроксимирована следующей формулой (Рисунок 21в):

$$L_d(\Delta c_{Li}) = \frac{L_0}{\Delta c_{Li} + b_l} + L_{\infty} \quad (13)$$

где $L_0 = k(U - U_{th,k})$, $L_{\infty} = k_{\infty}(U - U_{th,k})$, предельное значение длины домена, b_l – константа.

Зависимость ширины основания домена от Δc_{Li} может быть аппроксимирована формулой (Рисунок 21г):

$$w_d(\Delta c_{Li}) = \frac{w_0}{\Delta c_{Li} + b_w} + w_{\infty} \quad (14)$$

где $w_0 = k_w \sqrt{U - U_{th}}$, $w_{\infty} = k_{\infty} \sqrt{U - U_{th}}$ предельное значение ширины основания домена, b_w – константа.

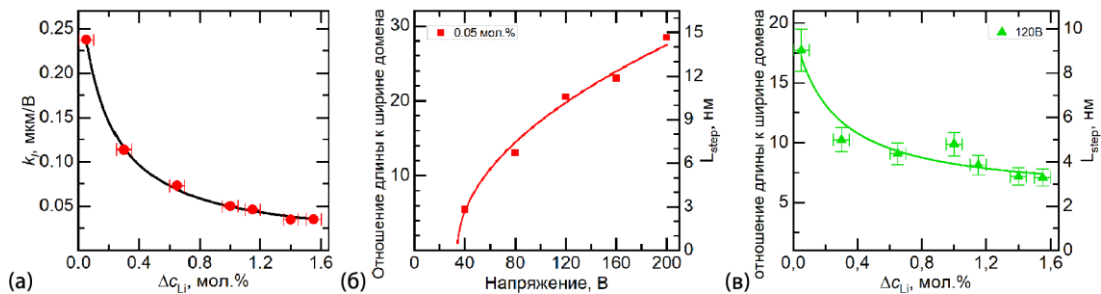


Рисунок 23 – Зависимости в LN с различным составом: (а) k_l от Δc_{Li} и отношения длины к ширине основания домена и L_{step} : (б) от напряжения, в) от Δc_{Li} для напряжения 120 В. Экспериментальные точки аппроксимированы следующими зависимостями: (а) – (11), (б) – (10), (в) – (14).

Зависимости AR от Δc_{Li} были аппроксимированы формулой

$$AR(\Delta c_{Li}) = \frac{1}{a} L_{step}(\Delta c_{Li}) = \frac{L_d(\Delta c_{Li})}{w_d(\Delta c_{Li})} \quad (15)$$

Седьмая глава посвящена измерению электромеханических характеристик бидоменных актюаторов, созданных из пластин с заряженной доменной стенкой и изготовленных термодиффузионным сращиванием монодоменных пластин.

Для измерений зависимости величины отклонений свободного конца актюаторов от приложенного напряжения (δ) использовались треугольные биполярные импульсы с амплитудой 5 В и частотой 120 Гц. (Рисунок 24).

Смещение свободного конца бидоменного актюатора линейно зависит от приложенного напряжения U [13]

$$\delta(U) = kU \quad (16)$$

где $k = \frac{3}{2} d_{31} \frac{l^2}{t^2}$ – электромеханический коэффициент передачи, d_{31} – пьезоэлектрический коэффициент, l – длина свободного конца актюатора, t – толщина актюатора.

Полученные значения k для актюаторов с заряженными доменными стенками приведены в таблице 3.

Таблица 3 – Параметры бидоменных актюаторов.

Бидоменный актюатор	LT0	LT1-12	LT2-24
ΔCLi , мол. %	0,8	0,4	0,1
R_z , мкм	40	50	65
k , пм/В	430	410	390

Увеличение шероховатости заряженной доменной стенки приводит к заметному уменьшению электромеханического коэффициента передачи k (Рисунок 25). Следовательно, максимальное смещение свободного конца актюатора может быть получено для плоской заряженной доменной стенки.

Бидоменные актюаторы с плоской доменной стенкой были изготовлены термодиффузионным сращиванием монодоменных пластин ниобата лития с оптимальным для пьезоэлектрических применений $Y+128^\circ$ срезом (Рисунок 26а).

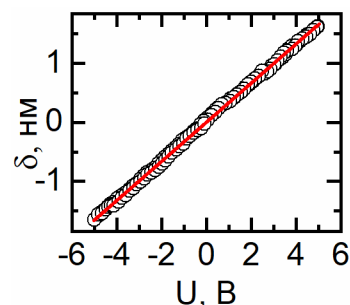


Рисунок 24 – Зависимость от напряжения смещения свободного конца бидоменного актюатора LT1-12

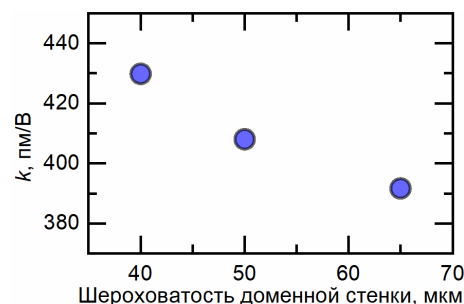


Рисунок 25 – Зависимость электро-механического коэффициента передачи k актюаторов от шероховатости заряженной доменной стенки. Измеренные значения пересчитаны для длины 5 мм и толщины 0,5 мм.

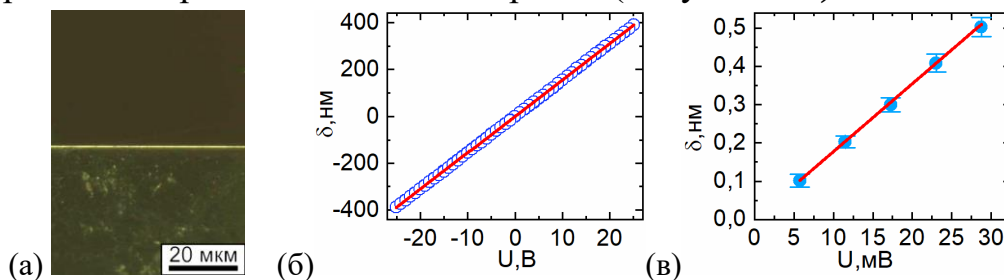


Рисунок 26 – (а) Оптическое изображение плоской доменной стенки на поперечном сечении биморфного актюатора, полученного термодиффузионным сращиванием монодоменных пластин LN. Зависимости смещения конца актюатора от напряжения, измеренные: (б) лазерным интерферометром, (в) атомно-силовым микроскопом.

Коэффициент электромеханической передачи k актюатора равен 15,9 нм/В. Форма доменной стенки не изменялась при приложении поля до 1 кВ/мм. Была продемонстрирована линейность, отсутствие гистерезиса для смещения конца актюатора вплоть до субнанометровых значений (Рисунок 26в), отсутствие эффекта усталости к циклическим нагрузкам и сохранение характеристик после температурных воздействий от -196 до 600°C. Шаг смещения на 0,1 нм соответствует изменению напряжения 5,8 мВ.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные исследования исходной доменной структуры и ее перестройки в однородном электрическом поле в LT, а также переключения поляризации в LN с пространственно неоднородным отклонением от стехиометрического состава, полученным методом отжига в шихте и на воздухе, позволили сделать следующие основные выводы:

1. Продemonстрирована возможность управления пространственным распределением состава в LN и LT за счет изменения параметров отжига в шихте и на воздухе, что позволило создавать исходную ДС с заряженной доменной стенкой в области изменения знака градиента состава.
2. Впервые измерена шероховатость заряженных доменных стенок, образующихся в результате фазового перехода в LN с неоднородным составом и показано, что она определяется величиной пространственного распределения градиента состава в области смены знака градиента.
3. Впервые выявлен и изучен эффект образования выступов на заряженной доменной стенке в LT под действием пьезоэлектрического поля в процессе охлаждения после фазового перехода.
4. Изменение формы сечения цилиндрических доменов с глубиной в LT с неоднородным распределением состава позволило определить зависимость формы доменов от состава.
5. Образование и рост к полярной поверхности выступов на заряженной доменной стенке в LT во внешнем постоянном электрическом поле.
6. Проведенный анализ зависимости от времени доли площади, занимаемой растущими доменами, позволил выявить основные этапы эволюции ДС на полярной поверхности при распаде заряженной доменной стенки в LT, включающие формирование и распад лабиринтовой ДС.
7. Впервые измерены зависимости размеров клиновидных доменов от параметров переключения и состава при локальном переключении на неполярном срезе в широком диапазоне составов в LN.
8. Выявлена зависимость электромеханического коэффициента передачи бидоменного актюатора от толщины заряженной доменной стенки и разработана оригинальная технология создания бидоменного актюатора с плоской доменной стенкой методом термодиффузионного сращивания монодоменных пластин.

Перспективы дальнейшей разработки темы:

Результаты, полученные в ходе выполнения диссертационной работы, будут использованы для развития методов доменной инженерии. Дальнейшие исследования будут направлены на изучение эволюции различных типов исходной доменной структуры при переключении поляризации в LT и LN в широком температурном диапазоне, а также будет исследоваться локальное переключение поляризации на полярном срезе в кристаллах LT и LN с градиентами состава.

ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Shur, V. Y. Domain nanotechnology in ferroelectric single crystals: lithium niobate and lithium tantalate family / V. Y. Shur // *Ferroelectrics*. – 2013. – Vol. 443. – P. 71–82.
2. Shur, V. Y. Micro- and nano-domain engineering in lithium niobate / V. Y. Shur, A. R. Akhmatkhanov, I. S. Baturin // *Appl. Phys. Rev.* – 2015. – Vol. 2. – P. 040604.
3. Direct observation of ferroelectric domain walls in LiNbO₃: wall-meanders, kinks, and local electric charges / J. Gonnissen et al. // *Adv. Funct. Mater.* – 2016. – Vol. 26. – P. 7599–7604.
4. Stoichiometric LiNbO₃ single crystal growth by double crucible Czochralski method using automatic powder supply system / K. Kitamura et. al. // *J. Crystal Growth*. – 1992. – Vol. 116. – P. 327–332.
5. Tian, L. Domain reversal in stoichiometric LiTaO₃ prepared by Vapor Transport Equilibration / L. Tian, V. Gopalan, L. Galambos // *Appl. Phys. Lett.* – 2004. – Vol. 85. – P. 4445.
6. Effect of Li diffusion on the domain inversion of LiNbO₃ prepared by vapor transport equilibration / Y. Chen, et. al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2002. – Vol. 81. – P. 700–702.
7. As-grown domain structure in lithium tantalate with spatially nonuniform composition / V. I. Pryakhina et. al. // *Ferroelectrics*. – 2018. – Vol. 525. – P. 47–53.
8. Fontana, M. D. Microstructure and defects probed by Raman spectroscopy in lithium niobate crystals and devices / M. D. Fontana, P. Bourson // *Appl. Phys. Rev.* – 2015. – Vol. 2. – P. 040602.
9. Kostritskii, S. M. Raman spectroscopy study of compositional inhomogeneity in lithium tantalate crystals / S. M. Kostritskii, M. Aillerie, P. Bourson, D. Kip // *Appl. Phys.* – 2009. – Vol. 95. – P. 125–130.
10. Three-dimensional ferroelectric domain visualization by Čerenkov-type second harmonic generation / Y. Sheng et. al. // *Opt. Express*. – 2010. – Vol. 18. – P. 16539.
11. Pyroelectric coefficients of LiNbO₃ crystals of different compositions / T. Bartholomäus et. al. // *Physica Status Solidi (a)*. – 1994. Vol. 142. – P. K55–K57.
12. Ping, S. Dielectric and pyroelectric properties of LiTaO₃ single crystals / S. Ping, L. Lin // *Ferroelectrics*. – 1981. – Vol. 38. – P. 821–823.
13. Magnetoelectric metglas/bidomain Y+140°-cut lithium niobate composite for sensing fT magnetic fields / A. V. Turutin et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2018. – Vol. 112. – P. 262906.
14. Shur, V. Ya. Micro- and nanodomain imaging in uniaxial ferroelectrics: Joint application of optical, confocal Raman, and piezoelectric force microscopy / V. Ya. Shur, P. S. Zelenovskiy // *J. Appl. Phys.* – 2014. – Vol. 116. – P. 054101.
15. Rosenman, G. Diffusion-induced domain inversion in ferroelectrics / G. Rosenman, V. D. Kugel, D. Shur // *Ferroelectrics*. – 1995. – Vol. 172. – P. 7–18.
16. Shur, V. Arising and evolution of the domain structure in ferroics / V. Shur, E. Rumyantsev // *J. Korean Phys. Soc.* – 1998. – Vol. 32. – P. S727–S732.
17. Chezganov, D. S. Polarization reversal in crystals of congruent lithium tantalate at elevated temperatures / D. S. Chezganov, V. Ya. Shur, I. S. Baturin, A. R. Akhmatkhanov // *Ferroelectrics*. – 2012. – Vol. 439. – P. 40–46.
18. Shur, V. Ya. Superfast domain walls in KTP single crystals / V. Ya. Shur, A. A. Esin, M. A. Alam, A. R. Akhmatkhanov // *Appl. Phys. Lett.* – 2017. – Vol. 111. – P. 152907.
19. Shur, V. Kinetics of phase transformations in real finite systems: Application to switching in

- ferroelectrics / V. Shur, E. Rumyantsev, S. Makarov // J. Appl. Phys. – 1998. – Vol. 84. – P. 445.
20. Shur, V. Y. Kinetics of ferroelectric domain structure during switching: Theory and experiment / V. Y. Shur, E. L. Rumyantsev // Ferroelectrics. – 1994. – Vol. 151. – P.171–180.
21. Forward growth of ferroelectric domains with charged domain walls. Local switching on non-polar cuts / V. Ya. Shur et al. // J. Appl. Phys. – 2021. – Vol. 129. – P. 044103.
22. Dynamics of ferroelectric domain growth in the field of atomic force microscope / A. Agronin et al. // J. Appl. Phys. – 2006. – Vol. 99. – P. 104102.
23. Kalinin, S. V. Nanoelectromechanics of piezoresponse force microscopy / S. V. Kalinin, E. Karapetian, M. Kachanov // Phys. Rev. B. – 2004. – Vol. 70. – P. 1-24.

СПИСОК ОСНОВНЫХ ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи, опубликованные в рецензируемых научных журналах и изданиях, определенных ВАК РФ и Аттестационным советом УрФУ:

1. Shur, V. Ya. Hysteresis-free High-temperature Precise Bimorph Actuators Produced by Direct Bonding of Lithium Niobate Wafers / V. Ya. Shur, I. S. Baturin, E. A. Mingaliev, D. V. Zorikhin, A. R. Udalov, **E. D. Greshnyakov**, // Appl. Phys. Lett. – 2015. Vol. 106. – P. 053116-1-4. – 0,5 п.л./ 0,15 п.л. – (Scopus, Web of Science).
2. Pryakhina, V. I. Influence of composition gradients on heat induced initial domain structure in lithium tantalate / V. I. Pryakhina, **E. D. Greshnyakov**, B. I. Lisjikh, M. S. Nebogatikov, V. Ya. Shur // Ferroelectrics. – 2019. – Vol. 542. – P.13-20. – 0,5 п.л./ 0,15 п.л. – (Scopus, Web of Science).
3. Greshnyakov, E. D. Charged domain walls in lithium tantalate with compositional gradients produced by partial VTE process / **E. D. Greshnyakov**, B. I. Lisjikh, V. I. Pryakhina, M. S. Nebogatikov, V. Ya. Shur // IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. – 2019. – Vol. 699. – P. 012015-1-5. – 0,3 п.л./ 0,1 п.л. – (Scopus).
4. Greshnyakov, E. D. Polarization reversal in lithium niobate with inhomogeneous stoichiometry deviation / **E. D. Greshnyakov**, B. I. Lisjikh, V. I. Pryakhina, V. Ya. Shur // Ferroelectrics. – 2020. – Vol. 559. – P. 102-108. – 0,4 п.л./ 0,15 п.л. – (Scopus, Web of Science).
5. Greshnyakov, E. D. Transformation of initial domain structure by ac electric field in lithium tantalate crystals with composition gradient / **E. D. Greshnyakov**, V. I. Pryakhina, B. I. Lisjikh, M. S. Nebogatikov, V. Ya. Shur // Ferroelectrics. – 2021. – Vol. 574. – P. 136-143. – 0,45 п.л./0,15 п.л. – (Scopus, Web of Science).
6. Greshnyakov, E. D. Tip-induced domain growth on the non-polar cut of lithium niobate with various stoichiometry deviations / **E. D. Greshnyakov**, A. P. Turygin, V. I. Pryakhina, V. Ya. Shur // J. Appl. Phys. – 2022. – Vol. 131. – P. 214103. – 0,5 п.л./0,25 п.л. – (Scopus).
7. Greshnyakov, E. D. Shape of charged domain walls in bidomain lithium tantalate plates with composition gradients / **E. D. Greshnyakov**, V. I. Pryakhina, B. I. Lisjikh, A. D. Ushakov, M. S. Nebogatikov, V. Ya. Shur // Ferroelectrics. 2022. – Vol. 592. – P. 26-36. – 0,7 п.л./0,25 п.л. – (Scopus).

Патенты:

1. Патент №2539104 Российская Федерация, МПК H01L 41/22 (2013.01). Способ изготовления безгистерезисного актюатора с линейной пьезоэлектрической характеристикой: №2013134491/28 : заявлен 24.07.2013 : опубликован 10.01.2015 / Шур В. Я., Батулин И. С., Мингалиев Е. А., Конев М. В., Зорихин Д. В., Удалов А. Р., **Грешняков Е. Д.** ; заявитель ФГАОУ ВПО «УрФУ имени первого Президента России Б.Н. Ельцина». – 2с. : ил.

Другие публикации:

Результаты работы были также опубликованы в 16 тезисах всероссийских и международных конференций.