

УДК 535.36 : 537.226 : 539.21

## ОБЪЕМНАЯ ВИЗУАЛИЗАЦИЯ 180°-СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ДОМЕНОВ В $\text{LiNbO}_3$ С ПОМОЩЬЮ ЭЛЕКТРООПТИЧЕСКИХ ЭФФЕКТОВ

А. И. Отко, А. Е. Носенко, И. М. Сольский, Я. В. Бурак

Описана методика визуализации коллинеарных 180°-доменов в объеме монокристаллов  $\text{LiNbO}_3$ , основанная на получении оптического контраста доменов (наблюдаемых в поляризованном микроскопе при скрещенных николях) за счет электрооптических эффектов в полях, перпендикулярных вектору спонтанной поляризации  $P_s$ . Рассматриваются два варианта метода: с приложением к образцам внешнего электрического поля и с использованием внутренних локальных полей, создаваемых нескомпенсированными пьезоэлектрическими зарядами на доменных границах непараллельных  $P_s$ . Последний способ позволяет наблюдать домены как по направлению оси  $z \parallel P_s$ , так и вдоль осей  $x$  и  $y$ , отличается высоким разрешением и информативностью. Наблюдения, выполненные по описанной методике, свидетельствуют о большом разнообразии форм 180°-доменов в  $\text{LiNbO}_3$  и существенном влиянии макродефектов монокристаллов на доменную структуру.

Ниобат лития  $\text{LiNbO}_3$  (НЛ) является одним из широко применяемых в современной технике сегнетоэлектрических материалов. Несмотря на большое число публикаций, посвященных получению и свойствам совершенных монокристаллов НЛ [1], проблемы, связанные с их доменной структурой, изучены все еще недостаточно. Основной причиной такого положения является то, что 180°-домены, свойственные НЛ как одноосному сегнетоэлектрику, в обычных условиях недоступны прямым кристаллооптическим наблюдениям и до сих пор изучались только методами, выявляющими доменный рисунок на поверхности кристаллов [1-4], или по косвенным эффектам, например специфическим характеристикам рассеяния света [5].

В настоящей работе сообщается о возможностях изучения доменной структуры в объеме кристаллов НЛ с помощью поляризационного микроскопа в условиях, когда оптический контраст 180°-доменов создается за счет электрооптических эффектов. В одном из вариантов метода визуализации эти эффекты вызываются внешним электрическим полем, в другом — внутренними полями нескомпенсированных пьезоэлектрических зарядов, локализованных на доменных границах.

Исследования проводились на образцах, вырезанных из буль НЛ диаметром  $\approx 80$  мм. Образцы изготовлялись в виде плоскопараллельных пластинок  $z$ - и  $y$ -срезов толщиной 1—1.4 мм, основные грани которых подвергались химико-механической полировке. Монокристаллы выращивались по методу Чохральского в воздушной атмосфере из платиновых тиглей с высокочастотным нагревом и с применением платиновых активных экранов, уменьшающих градиенты температуры в растущем кристалле. Монокристаллы подвергались послеростовой монодоменизации путем нагрева до 1180 °С в электрическом поле. Для экспериментов по визуализации доменов подбирались образцы, в которых по результатам предварительного обследования методом заряженных порошков или химического травления [1] обнаруживались участки, где монодоменизация оказалась незавершенной.

## 1. Визуализация доменов во внешнем электрическом поле, перпендикулярном полярной оси

Доменная структура в объеме кристаллов НЛ наблюдалась нами с помощью метода, примененного ранее Бородиной и др. [6, 7] для визуализации  $180^\circ$ -доменов (*c*-доменов) в титанате бария.

Метод основан на использовании деформации оптической индикатрисы во внешнем электрическом поле, направленном перпендикулярно спонтанной поляризации. Под действием такого поля главные оси оптических индикатрис в доменах противоположной полярности отклоняются от оси *z* кристалла в противоположные стороны на малый угол  $\alpha \sim P_1/P_s$ , где  $P_s$  — спонтанная поляризация;  $P_1 = \epsilon_{\perp} E / (4\pi)$  — поляризация, индуцированная внешним полем *E*; очевидно, что  $P_1 \ll P_s$ ,  $P_1 \perp P_s$ .

Для получения оптического контраста  $180^\circ$ -доменов образец НЛ в виде пластинки *z*-среза, находящейся под действием поперечного поля, должен устанавливаться между скрещенными поляризаторами микроскопа с наклоном, обеспечивающим совмещение оси микроскопа с главной осью оптической индикатрисы доменов одного знака. Тогда при малой угловой апертуре освещения эти домены окажутся близкими к погасанию. В то же время домены противоположной полярности, в которых ось индикатрисы отклонена от направления распространения света на угол  $\sim 2\alpha$ , останутся просветленными. Контраст визуализированной картины доменов зависит от взаимной ориентации плоскости поляризации света и приложенного поля, а также от относительной суммарной толщины доменов разной полярности, пересекаемых лучами, формирующими изображение.

В наших экспериментах для создания поперечного поля на пластинки НЛ *z*-среза наносились электроды из аквадага, которые охватывали боковые кромки образцов и частично основные грани (0001), (000 $\bar{1}$ ) таким образом, что между электродами оставалась непокрытая полоса шириной 2—4 мм. Напряженность прикладываемого поперечного поля достигала  $10^6$  В/м. Испытывались образцы с различной ориентацией электродов (перпендикулярно оси *x* либо *y*), но существенных различий в их поведении замечено не было.

Пример доменной структуры, визуализированной с помощью поперечного поля, показан на рис. 1. Картина наглядно свидетельствует о чрезвычайно сложной топологии трехмерной многосвязной доменной структуры, для которой характерно «губчатое» строение.

Заметим, что в ряде образцов встречаются  $180^\circ$ -домены сложной конфигурации, которым сопутствуют слабые локальные оптические неоднородности. При тщательной настройке поляризационного микроскопа такие домены можно обнаружить без специальных приемов, однако наложение поперечного поля позволяет резко усилить контраст наблюдаемой картины и облегчает изучение пространственной геометрии доменной структуры.

## 2. Визуализация доменов за счет пироэлектрических зарядов на доменных границах

В  $180^\circ$ -сегнетоэлектрических доменах сложной формы неизбежно существование связанных зарядов на участках доменных границ, которые непараллельны вектору спонтанной поляризации. В состаренных кристаллах НЛ, длительное время находящихся в неизменных условиях, поляризационные связанные заряды экранируются равновесным распределением объемного заряда, благодаря чему в полидоменных образцах отсутствуют неоднородные внутренние электрические поля. При достаточно быстрых изменениях поляризации или геометрии доменной структуры компенсация зарядов нарушается и доменные границы становятся источниками

внутренних электрических полей. В НЛ, обладающем сильным пирозффектом [1], неравновесное распределение зарядов, однозначно связанное с геометрией границ  $180^\circ$ -доменов, легко получить при быстром изменении температуры кристалла.

В наших экспериментах образцы НЛ выдерживались при температуре  $150\text{--}200^\circ\text{C}$  в течение  $0.5\text{--}1$  ч, после чего быстро охлаждались до комнатной температуры. Достаточно большая скорость охлаждения обеспечивалась при остывании образцов на открытом воздухе (максимальная скорость охлаждения  $\approx 5$  К/с).

Неэкранированные пирозаряды на доменных границах создают внутренние поля, которые при обычных условиях сохраняют значительную

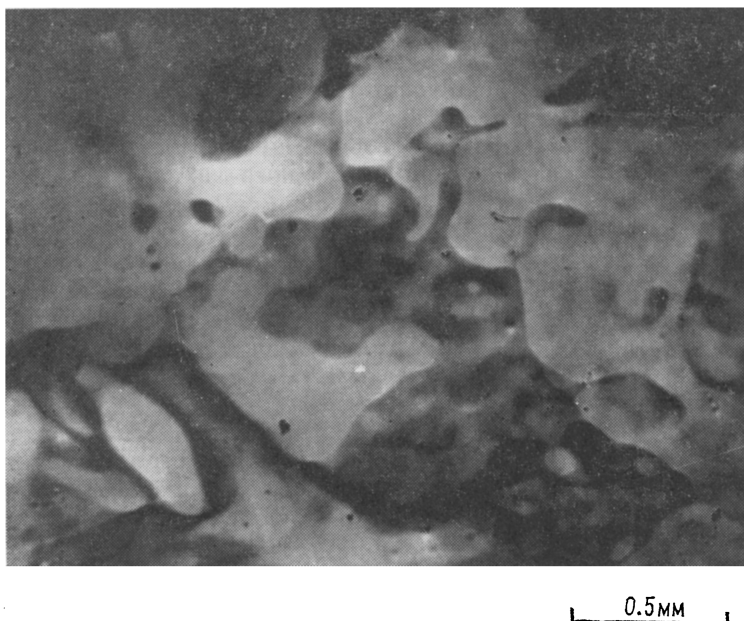


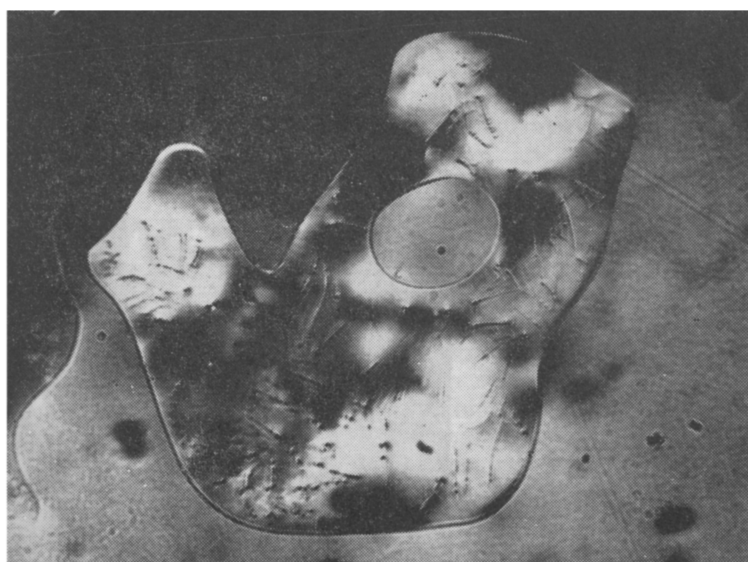
Рис. 1. Доменная структура пластинки  $z$ -среза  $\text{LiNbO}_3$ , визуализированная в поперечном поле  $E=5.6$  кВ/см.

Наблюдение в скрещенных поляризаторах при наклоне образца на  $4^\circ$  ( $\alpha \approx 2^\circ$ ), толщина образца  $1.4$  мм.

величину на протяжении нескольких суток. Заметим, что быстрая релаксация внутренних полей достигается при облучении образцов светом ксеноновой лампы, эффективно генерирующим в НЛ носителем тока.

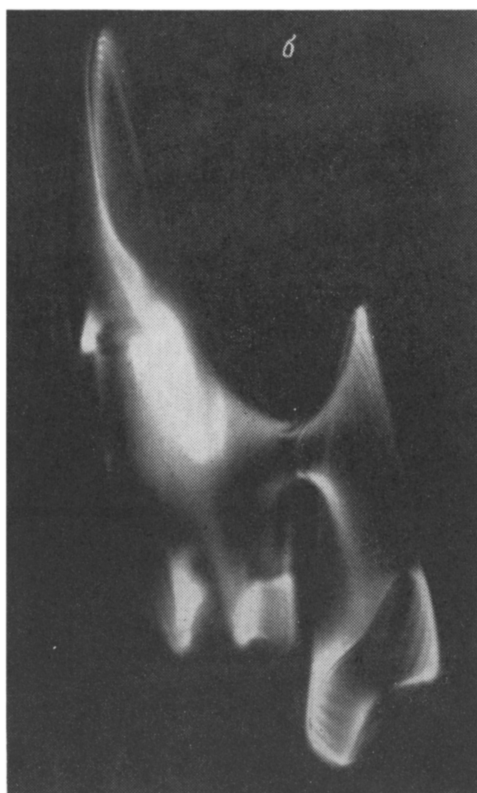
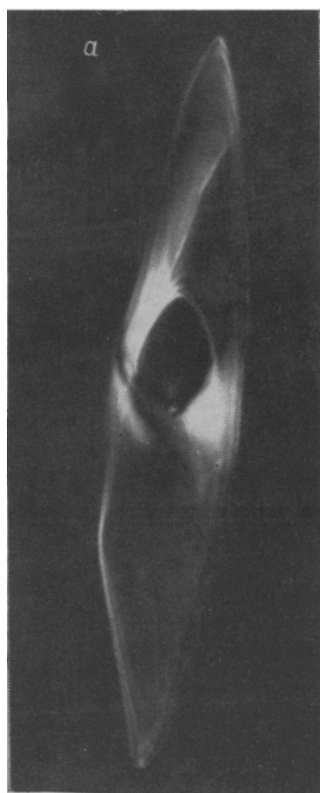
Внутренние поля аналогично известному электрооптическому механизму возникновения оптических неоднородностей в НЛ [1] индуцируют вариации кристаллооптических характеристик. В частности, поля, имеющие поперечные  $E_x$  и  $E_y$ -составляющие, приводят к локальным искажениям (двуосности) и поворотам оптической индикатрисы, что позволяет выявлять  $180^\circ$ -домены с помощью поляризационного микроскопа.

Необходимым условием успешной визуализации доменов этим методом является обеспечение возможно более полного погасания монодоменного оптически одноосного состояния, занимающего основной объем кристалла. Контрастные изображения  $180^\circ$ -доменов могут быть получены в слабо рассеивающих свет кристаллах НЛ при малой угловой апертуре освещения, оптимальном подборе элементов и точной юстировке высококачественной оптической системы микроскопа. Наши наблюдения выполнялись с помощью микроскопа Jenaval с объективом Planachromat  $\times 12.5/0.25 \infty/$  А при монохроматическом освещении (интерференционный фильтр  $545$  нм) с угловой апертурой не более  $0.05$ .



0.2 мм

Рис. 2. Домен в быстро охлажденном образце  $\text{LiNbO}_3$ , визуализированный за счет пироэлектрооптического эффекта, наблюдаемый в направлении оси  $z \parallel P_s$ .

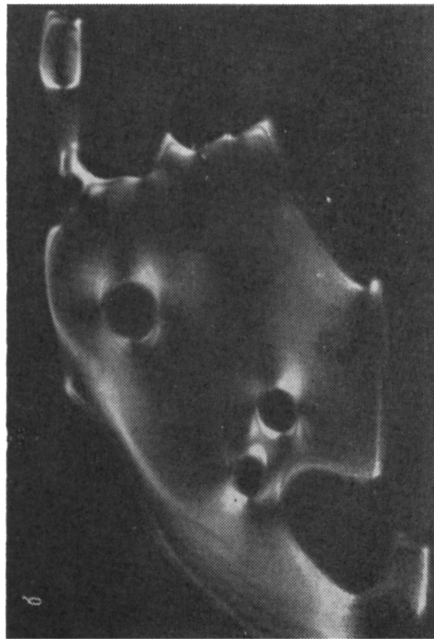
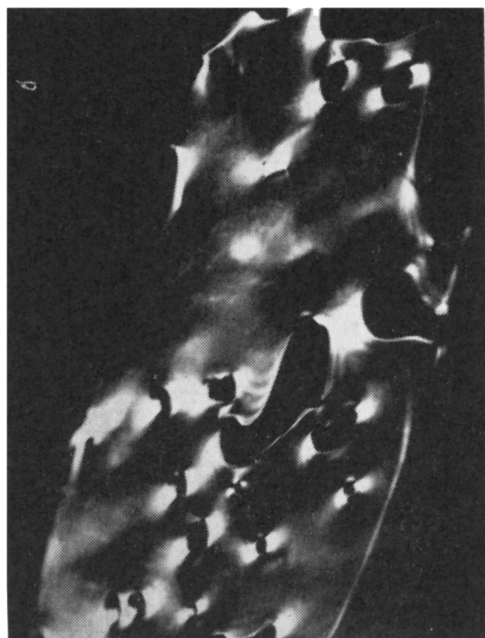
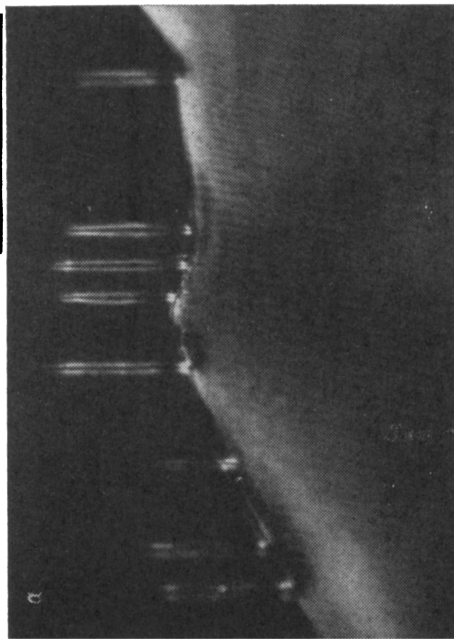


0.1 мм

Рис. 3. Объемные домены, визуализированные за счет пироэлектрооптического эффекта, наблюдаемые в направлении оси  $y \perp P_s$ . Ось  $z$  вертикальна.

Рис. 4. Домены особых форм, визуализированные за счет пиротрооптического эффекта, наблюдаемые в направлении оси  $y \perp R_z$ .

*a* — иглообразные домены на гребне объемного домена, *б* — домен в форме «дырчатой пленки».



Визуализованную за счет пирозлектрооптического эффекта доменную структуру НЛ можно наблюдать как вдоль полярной оси  $z \parallel P_s$ , так и по направлениям осей  $x$  и  $y$  (после установки образца соответствующего среза в положение погасания), что является важным преимуществом метода. Типичные примеры  $180^\circ$ -доменов, наблюдаемых по описанному методу, показаны на рис. 2—4.

### 3. Обсуждение результатов

Общим достоинством описанных методов визуализации  $180^\circ$ -доменов в НЛ является возможность получения наглядной информации о форме и расположении доменов во всем объеме образцов, простота и неразрушающий характер исследований. В то же время между ними имеются качественные различия.

В методе поперечного поля структура изображения определяется относительной суммарной толщиной доменов одного знака вдоль луча зрения в каждой точке образца, и картина по существу аналогична теневой проекции доменной структуры на плоскость  $(x, y)$ . Недостатком этого метода является практическая невозможность проводить наблюдения в направлениях, отличных от полярной оси.

Структура изображений, получаемых с помощью пирозлектрооптического эффекта, определяется явлениями на доменных границах и непосредственно почти не зависит от толщины «тела» доменов. Характерной особенностью сложного механизма формирования изображения в этом случае является способность подчеркивать особенности геометрии доменных границ, а также высокая чувствительность к локальным неоднородностям кристалла. Так, например, на изображениях доменов часто заметны полосы роста, которые не наблюдаются при исследовании тех же образцов обычными методами оптической микроскопии.

Описанные методы визуализации  $180^\circ$ -доменов несомненно расширяют возможности исследования НЛ. Особенно перспективным представляется метод визуализации, основанный на пирозлектрооптическом эффекте. Наши предварительные наблюдения, выполненные вдоль осей  $z$  и  $y$ , свидетельствуют о морфологическом разнообразии типичных элементов доменной структуры НЛ, сложной взаимосвязи объемных и иглообразных доменов, сосуществующих в большинстве изученных образцов. Ряд особенностей доменной структуры подтверждает наличие заметной корреляции в расположении  $180^\circ$ -доменов и макродефектов в булях.

#### Список литературы

- [1] Кузьминов Ю. С. Электрооптический и нелинейно-оптический кристалл ниобата лития. М.: Наука, 1987. 264 с.
- [2] Евланова Н. Ф., Кошчик В. А., Раткович Л. Н. // Кристаллография. 1978. Т. 23. № 4. С. 856—859.
- [3] Aristov V. V., Kokhanchik L. S., Voronovskii Yu. I. // Phys. St. Sol. (a). 1984. V. 86. N 1. P. 133—141.
- [4] Vreeland T. Yr., Speriosu V. S. // Appl. X-ray Topographic Meth. Mater. Sci. Proc. France—USA, 7—10 Aug., 1983. N. Y., London, 1984. P. 501—509.
- [5] Лемешко В. В., Обуховский В. В. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 6. С. 1614—1618.
- [6] Бородина В. А., Кузнецов В. Г., Бородин В. З. // А. с. 1038840. Б. И. 1983. № 32.
- [7] Бородина В. А., Кузнецов В. Г. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1984. Т. 48. С. 1146—1150.

Львовский государственный  
университет им. И. Франко  
Львов

Поступило в Редакцию  
27 марта 1989 г.