06,07

Неоднородная деформация монокристалла КТаО₃ вследствие обратного флексоэлектрического эффекта

© Е.Д. Обозова, П.П. Сырников, В.Г. Залесский

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия E-mail: nsh@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 7 ноября 2017 г.)

В тонких монокристаллических пластинах KTaO₃ с помощью интерферометрического метода исследована неоднородная деформация, индуцированная внешним электрическим полем.

DOI: 10.21883/FTT.2018.05.45791.312

1. Введение

Флексоэлектрический эффект относится к электромеханическим эффектам в конденсированных средах и в значительной степени проявляется в кристаллах и пленках субмикронного и наноскопического размера, что является актуальным для разработки элементов интегральной электроники и микроэлектромеханических систем [1,2]. По аналогии с пьезоэффектом прямой флексоэлектрический эффект определяется как полярный отклик на градиент деформации, а при обратном эффекте неоднородная деформация является следствием поляризации внешним электрическим полем диэлектрической среды [1].

Впервые неоднородная деформация, индуцированная электрическим полем была обнаружена в тонких монокристаллических пластинах ВаТіО₃ [3,4]. В этих и последующих работах деформацию в виде цилиндрического изгиба (cantilever bending) наблюдали при жестком креплении одной из их кромок пластин или пленок к неподвижному основанию, при этом другие части оставались свободными для изгиба по цилиндрической поверхности. Очевидно, что в результате цилиндрического изгиба симметрия исходно кубического кристалла со структурой перовскита должна понижаться с т3т до тт2. Однако, согласно [3], смещение ионов под действием внешнего поля должно вызывать искажение элементарной ячейки из кубической (m3m) в ячейку в виде усеченной пирамиды с симметрией 4тт. В таком случае, для протяженного кристалла должен наблюдаться другой вид неоднородной деформации сферический изгиб. В большинстве работ исследовались два типа индуцированной деформации: цилиндрический изгиб и деформация неоднородного сжатия кристаллов [3-6]. Поэтому основной задачей серии работ по исследованию обратного флексоэлектрического эффекта в исходно кубических перовскитах является установление в них вида неоднородной деформации (деформация кручения, цилиндрический и сферический изгиб).

В предыдущей работе [7] уже сообщалось об обнаружении индуцированной деформации сферического изгиба тонкой монокристаллической пластины SrTiO₃. Этот материал обладает достаточно большой величиной диэлектрической проницаемости, что благоприятно для исследования флексоэлектричества. Кроме того, кубическая симметрия SrTiO₃ сводит к минимуму вклад пьезоэффекта в общую деформацию кристалла. Однако монокристаллы SrTiO₃ известны своими структурными неоднородностями и появлением объемного заряда при приложении внешнего поля [8], что усложняет изучение обратного флексоэлектрического эффекта. В настоящей работе исследования продолжены на родственных титанату стронция монокристаллах КТаО3, которые также обладают достаточно большой величиной диэлектрической проницаемости ($\varepsilon \sim 150$ при T = 300 K).

2. Эксперимент

Монокристаллы КТаО3 были выращены из растворарасплава методом спонтанной кристаллизации из исходных компонентов Та2О5 и К2СО3. Качество и ориентация кристаллографических направлений выращенных кристаллов контролировалось методом рентгеноструктурного анализа. Из кристаллов вырезались пластины, площадь поверхности (001) которых составляла 11×11 mm, а толщина — $140 \,\mu$ m. На отполированную до оптического качества поверхность пластин методом термического напыления наносились серебряные электроды диаметром 4.5 mm и толщиной 0.25 µm, которые также служили зеркалами. Края образцов приклеивались к неподвижному круглому контуру диаметром $8 \,\mathrm{mm}$ (рис. 1, a). К электродам прикладывалось напряжение до $U = 150 \, {\rm V}$ (E = 11 kV/cm) в виде импульсов треугольной формы разной полярности.

Деформация поверхности зеркального электрода исследовалась с помощью интерферометрического микроскопа Линника–Майкельсона (см. рис. 1, *a*, детали метода описаны в [9]). В приборе источником света



Рис. 1. (*a*) — схема интерферометрической установки для исследования индуцированной внешним полем деформации. (*b*) — микрофотография интерференционных колец. (*c*) — направления сканирования деформированной поверхности монокристаллической пластинки KTaO₃.

служил He–Ne лазер ($\lambda = 0.633 \,\mu$ m), а на выходе была установлена ССD-камера. Поле зрения микроскопа составляло 1 mm. Полученные изображения поверхности зеркала-электрода в виде интерференционных колец (рис. 1, b) анализировались методом "блинк-компарации", с помощью которого сравнивались пары снимков интерференционных картин до и после деформации. Метод позволял оценивать прогиб деформируемой поверхности по смещению интерференционных максимумов (минимумов) с точностью до 0.01 длины волны по следующей формуле [9]

$$\delta z = \frac{1}{2} \frac{(R_1^2 - R_0^2)}{2\lambda},$$
 (1)

где R_0 и R_1 — радиусы интерференционных колец до и после деформации поверхности. Радиусы интерферен-

ционных колец одновременно измерялись в двух взаимно перпендикулярных направлениях **X** и **Y** (рис. 1, *b*). Направления **X** и **Y** были привязаны к кристаллографическим направлениям [100] и [010] соответственно. Разница обоих радиусов позволяла оценивать астигматизм оптической системы, обусловленный нарушением осевой симметрии зеркальной поверхности электрода. Для каждого из направлений с помощью формулы (1) отдельно рассчитывалась величина прогиба поверхности δz_x и δz_y . Интерферометрический микроскоп также обеспечивал сканирование всей поверхности кристалла, что давало возможность непосредственно оценивать ее профиль (рис. 1, *c*).

3. Результаты

На начальном этапе проводились измерения прогиба центральной области поверхности кристалла. Импульс положительной полярности на зеркальном электроде вызывает сужение интерференционных колец от периферии к центру поля зрения. Изменение знака полярности, наоборот, приводит к их разбеганию. На рис. 2 показаны временные зависимости величин прогиба поверхности δz_x и δz_y , рассчитанные с помощью формулы (1) по данным наблюдения за движением колец в двух направлениях Х и У после подачи на электроды треугольных импульсов сначала положительной, затем отрицательной полярности. При увеличении положительного напряжения, начиная с порогового значения $U_{th} = 60 \text{ V} \ (E_{th} = 4 \text{ kV/cm})$ наблюдается почти одинаковый рост обеих величин δz_x и δz_y . Снижение напряжения сопровождается уменьшением δz_x и δz_y , при этом становятся заметными некоторая разница обеих величин и остаточная деформация. Деформационный отклик на



Рис. 2. Временная зависимость деформации в центре поверхности кристалла, как отклик на последовательность треугольных импульсов внешнего электрического поля, сначала положительной полярности (I), затем отрицательной полярности (II). Черные кружки — величина прогиба, полученная по движению колец в направлении X (см. рис. 1, *b*); белые — в направлении Y.



Рис. 3. Профили деформированной поверхности при сканировании в направлениях **X** и **Y** (см. рис. 1, c) в поле U = 150 V (E = 11 kV/cm). Показаны линии для оценки радиуса кривизны изгиба поверхности.

отрицательный треугольный импульс сопровождается более низким значением порогового поля $U_{th} = 15 \text{ V}$ ($E_{th} = 1 \text{ kV/cm}$), большей разницей обеих величин и большей величиной остаточной деформации.

Во второй части эксперимента, при сканировании поверхности пластин получены профили деформированной поверхности вдоль направлений $\mathbf{X} \parallel [100]$ и $\mathbf{Y} \parallel [010]$ (см. рис. 1, b) (рис. 3). Каждая точка на графиках соответствует величине максимального прогиба в точке с координатами x и y на поверхности пластины при максимальном значении треугольного импульса U = 150 V(E = 11 kV/cm). На полученных профилях, несмотря на некоторый разброс точек $\delta_Z(x)$ и $\delta_Z(y)$, видно, что прогиб возрастает от периферии зеркального электрода к его центру, как вдоль X-, так и вдоль Y-направлений. На рисунках также можно отметить некоторую асимметрию профилей изгибов, которые, по-видимому, связаны с неоднородностью кристалла и неоднородностью поля на границах электрода.

4. Обсуждение результатов

В тонких пластинах KTaO₃ наблюдается такой же характерный изгиб вогнутой поверхностью к положительно заряженному электроду, как и в случае обратного флексоэлектрического эффекта в ВаТіО₃ и SrTiO₃ [3,6,7]. На рис. 2 видно, что на временной зависимости величины деформации δz_x и δz_y ведут себя примерно одинаково, откуда следует, что деформируемая поверхность почти не меняет осевую симметрию оптической системы. Последнее предполагает деформацию сферического изгиба. Что касается гистерезиса и некоторой разницы в величинах δz_x и δz_y , то эти явления обусловлены релаксацией деформации. Согласно дополнительно проведенным экспериментам, причиной механической релаксации в КТаО₃ и SrTiO₃ является диэлектрическая релаксация, обусловленная объемным зарядом. Результаты этого исследования будут представлены в ближайшей публикации.

Окончательно вид неоднородной деформации может быть определен по характеру профилей $\delta z(x)$ и $\delta z(y)$, полученных по данным сканирования поверхности кристалла в Х- и Ү-направлениях (рис. 3). Линии окружности, проведенной около экспериментальных точек на графиках, позволяют оценить приблизительные радиусы изгиба. В случае сканирования в направлении Х для положительной и отрицательной полярностей радиусы изгиба соответствуют 50 и 60 m, а в направлении Y обе полярности дают примерно одинаковые радиусы порядка 45 m. Поскольку радиусы для двух взаимно перпендикулярных направлений отличаются не более чем на 10% (при положительной полярности) и 30% (при отрицательной), то вид полученной неоднородной деформации можно определить как изгиб близкий сферическому.

Некоторый разброс точек на зависимостях $\delta z(x)$ и $\delta z(y)$, по-видимому, обусловлен неоднородностями структуры в приповерхностной области КТаО₃, поскольку именно приповерхностные состояния определяют обратный флексоэлектрический эффект [1]. Однако этот разброс выражен в меньшей степени, чем в SrTiO₃, что делает исследуемый материал более привлекательным для последующих флексоэлектрических измерений.

5. Заключение

С помощью интерференционного метода исследован обратный флексоэлектрический эффект в монокристалле КТаО₃. Полученные данные, свидетельствующие о деформации типа сферического изгиба, означают, что обратный флексоэлектрический эффект в КТаО₃ сопровождается искажением элементарной ячейки из кубической *m*3*m* в ячейку в виде усеченной пирамиды с симметрией 4*mm*.

Авторы благодарят С.Г. Лушникова и А.С. Юркова за консультацию.

Список литературы

- P. Zubko, G. Catalan, A. Tagantsev. Ann. Rev. Mater. Res. 43, 387 (2013).
- [2] U. Bhaskar, N. Banerjee, A. Abdollahi, Zhe Wang, D. Schlom, G. Rijnders, G. Catalan. Nature Nanotechnology 11, 263 (2016).
- [3] Э.В. Бурсиан, О.И. Зайковский. ФТТ 10, 1413 (1968).
- [4] Э.В. Бурсиан, Н.Н. Трунов. ФТТ 16, 1187 (1974).
- [5] J.Y. Fu, Wenyi Zhu, Nan Li, L.E. Cross. J. Appl. Phys. 100, 024112 (2006).
- [6] Е.Д. Румянцева, В.Г. Залесский. ФТТ 56, 1301 (2014).
- [7] Е.Д. Обозова, В.Г. Залесский. Письма ЖЭТФ 103, 792 (2016).
- [8] K. Szot, W. Speier, G. Bihlmayer, R. Waser. Nature Mater. 5, 312 (2006).
- [9] Е.Д. Румянцева, В.Г. Залесский. ФТТ 58, 671 (2016).