

# МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ И ТЕХНОЛОГИЯ. ДИЭЛЕКТРИКИ

УДК 621.315.61

## **LiTaO<sub>3</sub> – МНОГОФУНКЦИОНАЛЬНЫЙ МАТЕРИАЛ ОПТО– И АКУСТОЭЛЕКТРОНИКИ**

© 2013 г. О. А. Бузанов, С. А. Сахаров, Д. В. Рощупкин<sup>1</sup>,  
Е. В. Емелин<sup>1</sup>, С. Д. Лавров<sup>2</sup>

ОАО «ФОМОС Материалс»,

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

Институт проблем проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН,

<sup>2</sup>Московский государственный технический университет

радиотехники, электроники и автоматики

Представлены результаты возможного применения сегнетоэлектрических кристаллов LiTaO<sub>3</sub> в акусто– и опто–электронике. Высокие значения пьезоэлектрических констант позволяют создавать резонаторы на объемных акустических волнах. Возможность прямой электронно–лучевой переполяризации кристалла LiTaO<sub>3</sub> позволяет формировать доменные структуры с шириной доменов от десятков нанометров до десятков микрометров. Периодические сегнетоэлектрические доменные структуры в кристалле LiTaO<sub>3</sub> использованы в качестве оптической дифракционной решетки и для генерации второй гармоники оптического излучения.

**Ключевые слова:** сегнетоэлектрический кристалл LiTaO<sub>3</sub>, электронно–лучевая переполяризация, ОАВ–резонаторы

### Введение

Развитие современных телекоммуникационных систем связано с развитием акусто– и оптоэлектронных устройств, позволяющих передавать и обрабатывать акустические и оптические сигналы в режиме реального времени [1–6]. Большое значение имеет поиск соответствующих материалов, которые обладают хорошими оптическими и акустическими свойствами. В этом случае большие перспективы имеют сегнетоэлектрические кристаллы LiNbO<sub>3</sub> и LiTaO<sub>3</sub>. Данные материалы обладают хорошими оптическими свойствами, большими значениями пьезоэлектрических констант, что позволяет использовать эти материалы для опто– и акустоэлектронных устройств. Большое значение имеет совершенство кристаллической структуры. Сегнетоэлектрические кристаллы LiNbO<sub>3</sub> и LiTaO<sub>3</sub> выращивают методом Чохральского, однако в процессе роста формируется полидоменный кристалл, что является энергетически выгодным состоянием для сегнетоэлектрического кристалла.

Для формирования монодоменного кристалла синтезированный полидоменный кристалл нагревают до температуры Кюри и прикладывают электрическое поле вдоль направления полярной оси Z, осуществляя процесс монодоменизации. Далее кристалл медленно охлаждают в условиях приложения внешнего электрического поля, что позволяет в итоге получить монодоменный монокристалл с равномерными оптическими и пьезоэлектрическими свойствами.

Большие перспективы применения кристаллов LiTaO<sub>3</sub> открываются с возможностью формирования доменных структур с заданными размерами от нескольких нанометров до нескольких миллиметров. Среди методов переполяризации и формирования сегнетоэлектрических доменных структур следует отметить метод послеростовой термоэлектрической обработки вблизи температуры Кюри в условиях приложения к кристаллу знакопеременного электрического поля [7], который позволяет получать объемные доменные структуры с шириной доменов от 10 мкм до нескольких

миллиметров, и метод прямой электронно–лучевой переполяризации [8], с помощью которого в тонких кристаллах можно формировать доменные структуры с размерами доменов от нескольких нанометров до нескольких микрометров. Возможность формирования периодических доменных структур с заданной шириной доменов позволяет находить новые перспективные виды применения в опто– и акусто–электронике. Прежде всего это возможность удвоения частоты оптического излучения [9] и генерации поверхностных акустических волн [10].

Ниже представлены результаты исследования кристалла  $\text{LiTaO}_3$ , выращенного методом Чохральского. Рассмотрена возможность применения пьезоэлементов из кристалла  $\text{LiTaO}_3$  для резонаторов на объемных акустических волнах (**ОАВ**).

Для проведения исследований оптических свойств в кристалле  $\text{LiTaO}_3$  сегнетоэлектрические доменные структуры сформировали методом прямой электронно–лучевой переполяризации. Эти доменные структуры использовали в качестве оптических дифракционных решеток и для генерации второй гармоники оптического излучения.

### Синтез кристаллов $\text{LiTaO}_3$

Сегнетоэлектрические кристаллы  $\text{LiTaO}_3$  выращивают из расплава методом Чохральского при температуре  $T_{\text{пл}} = 1660$  °С. В качестве материала тигля используют тугоплавкий Ir. Кристалл  $\text{LiTaO}_3$  характеризуется температурой Кюри  $T_C = 660$  °С, при которой происходит переход из парофазы в сегнетофазу. При комнатной температуре значение вектора спонтанной поляризации кристалла  $\text{LiTaO}_3$  составляет  $P_S = 60$  мКл/см<sup>2</sup>. На рис. 1 приведено изображение синтезированного кристалла  $\text{LiTaO}_3$ . После процесса роста кристалл является полидоменным, так как такое состояние соответствует минимуму энергии полярного кристалла. В опто– и акусто–электронике используют кристаллы с совершенной кристаллической структурой, поэтому необходимо осуществить процесс монодоменизации.

Для процесса монодоменизации кристалла  $\text{LiTaO}_3$  на полярные Z–поверхности кристалла на-

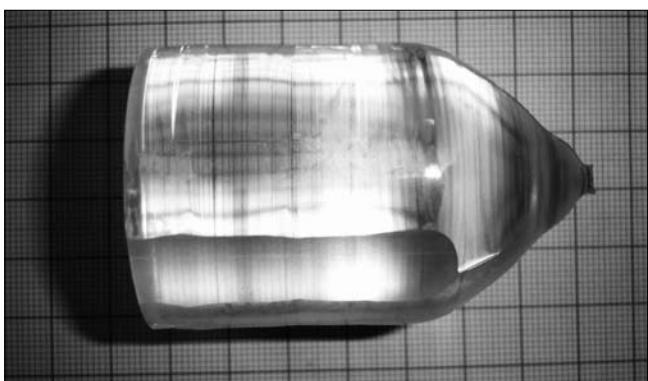
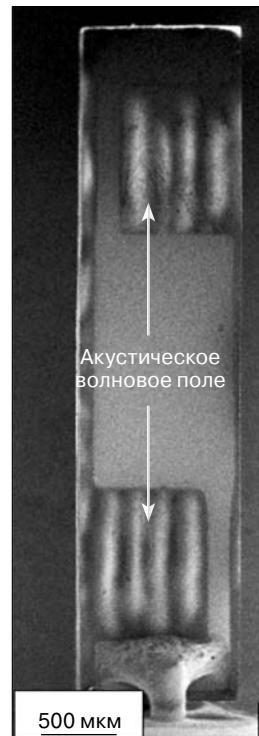


Рис. 1. Кристалл  $\text{LiTaO}_3$ , выращенный вдоль полярной оси Z {00.1}

Рис. 2. РЭМ–микрофотография полоскового резонатора на основе X–среза кристалла  $\text{LiTaO}_3$  ( $f_0 = 15,3635$  МГц)

носят иридиевые (или платиновые) электроды и помещают кристалл в печь. В печи кристалл нагревают до температуры Кюри, прикладывают к кристаллу внешнее электрическое поле, которое превышает соответствующее значение спонтанной поляризации  $P_S$  и затем медленно охлаждают до комнатной температуры. Такой процесс монодоменизации позволяет получить монокристалл  $\text{LiTaO}_3$  с практически совершенной кристаллической структурой.

### Резонаторы на объемных акустических волнах



Пьезоэлектрические константы кристалла  $\text{LiTaO}_3$  на порядок превышают значения пьезоконстант в кристалле пьезокварца  $\text{SiO}_2$  при хорошей термостабильности акустических свойств. Поэтому применение кристаллов  $\text{LiTaO}_3$  весьма привлекательно для изготовления резонаторных структур на ОАВ. На рис. 2 приведена микрофотография полоскового ОАВ–резонатора на основе X–среза кристалла  $\text{LiTaO}_3$  со специальной структурой Ag–электродов. Для визуализации акустического волнового поля в резонаторе в режиме реального времени использовали метод растровой электронной микроскопии (**РЭМ**) в режиме регистрации низкоэнергетичных вторичных электронов [11–13].

На рис. 2 на свободной поверхности резонатора представлено изображение акустического волнового поля в резонаторе при возбуждении поперечной объемной волны на резонансной частоте  $f_0 = 15,3635$  МГц.

### Формирование периодических доменных структур в кристаллах $\text{LiTaO}_3$ и исследование их оптических свойств

Для исследования процесса переполяризации кристалла  $\text{LiTaO}_3$  были изготовлены пластины 127°–ого Y'–среза (плоскости (104) параллельны поверхности кристалла) толщиной 300 мкм с двусторонней полировкой поверхности. В Y'–срезе кристалла  $\text{LiTaO}_3$  полярная ось Z составляет 37° с поверхностью подложки. Процесс электронно–лучевой переполяризации осуществляют на –Z'–поверхности подложки. На +Z'–поверхности подложки напыляют слой Al толщиной 100 нм и данную поверхность заземляют.

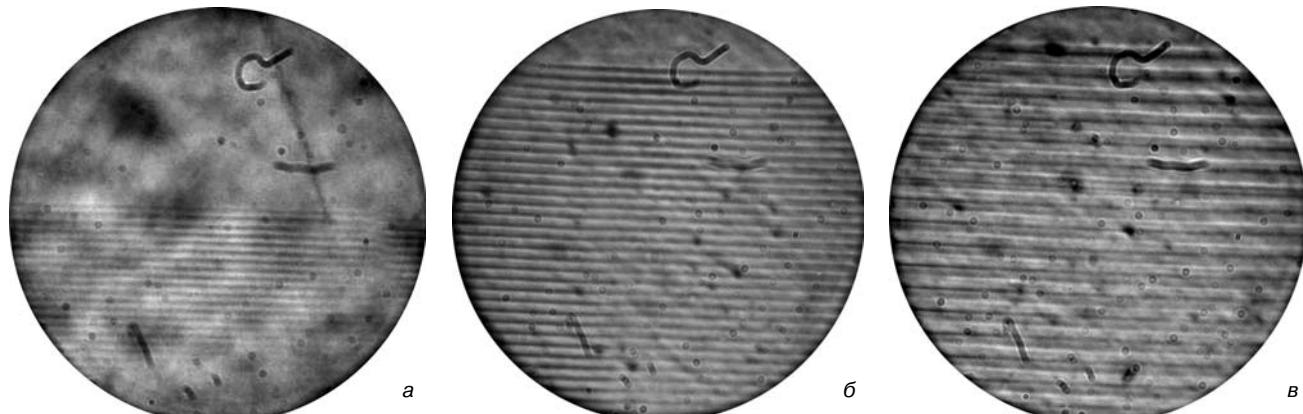


Рис. 3. Сегнетоэлектрические доменные структуры, сформированные методом прямой электронно–лучевой переполяризации в кристалле  $\text{LiTaO}_3$  с различной шириной доменов:  
а — 1 мкм; б — 5; в — 10

Особенностью процесса электронно–лучевой переполяризации кристалла  $\text{LiTaO}_3$  является то, что доменная структура прорастает от отрицательной поверхности к положительной, и процесс переполяризации является контролируемым. В кристаллах  $\text{LiNbO}_3$  процесс переполяризации осуществляют также путем электронно–лучевой литографии на отрицательной поверхности подложки; процесс переполяризации начинают с положительной поверхности и идут к отрицательной поверхности.

На рис. 3 представлены сегнетоэлектрические доменные структуры, сформированные методом электронно–лучевой литографии в  $127^\circ$ -ном  $\text{Y}'$ -срезе кристалла  $\text{LiTaO}_3$  с шириной доменов 1, 5 и 10 мкм. Площадь доменной структуры составляет  $400 \times 400 \text{ мкм}^2$ . Следует отметить, что при формировании доменных структур в  $127^\circ$ -ном  $\text{Y}'$ -срезе кристалла  $\text{LiTaO}_3$  домены прорастают не по нормали к поверхности подложки, а под углом  $37^\circ$  к поверхности вдоль направления вектора спонтанной поляризации  $P_S$  вдоль полярной оси  $Z$ . Небольшая величина  $P_S$  позволяет осуществлять контролируемый процесс электронно–лучевой переполяризации (контроль методом РЭМ в процессе переполяризации).

Для исследования сегнетоэлектрических доменных структур использовали оптические дифракционные методы. На рис. 4 представлена дифракция оптического излучения на сегнетоэлектрической доменной структуре при нормальном падении. В этом случае доменная структура является эффективной дифракционной решеткой.

Также исследовали процесс оптического излучения на сегнетоэлектрической доменной структуре с шириной доменов 5 мкм. Для исследования процесса



Рис. 4. Дифракция оптического излучения на доменной структуре с шириной доменов 5 мкм

генерации второй гармоники использовали фемто–секундный титан–сапфировый лазер с частотой повторения импульсов 100 МГц и шириной импульсов 90 фс. В ходе эксперимента использовали длину волны накачки 800 нм. Средняя выходная мощность с длиной волны 400 нм (вторая гармоника оптического излучения с длиной волны 800 нм) составляла 0,3 Вт (рис. 5).

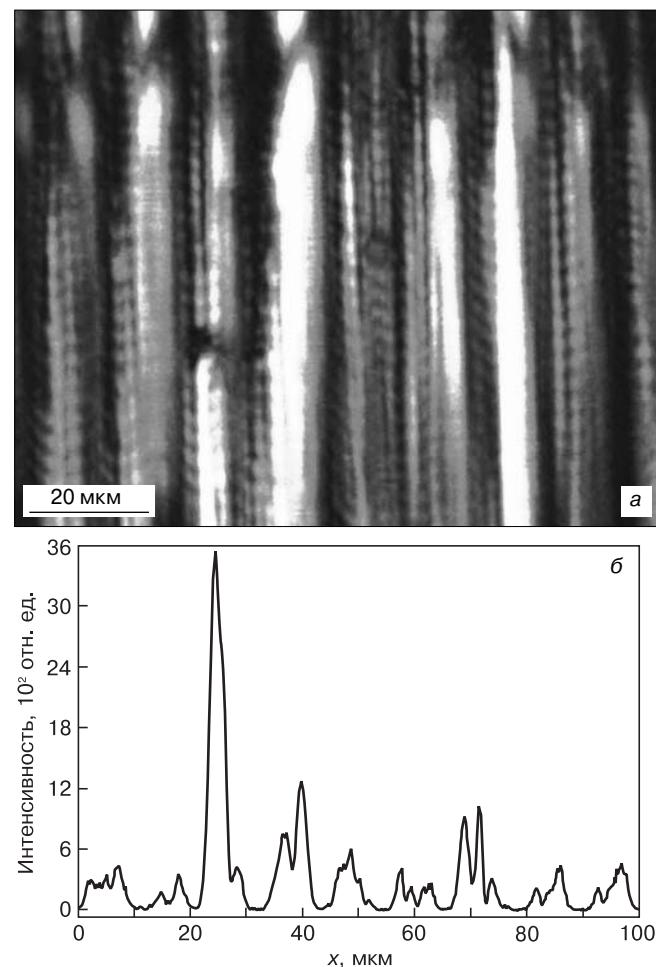


Рис. 5. Генерация второй гармоники оптического излучения с длиной волны 800 нм на доменной структуре в кристалле  $\text{LiTaO}_3$  с шириной доменов 5 мкм:  
а, б — двухмерное и поперечное распределение выхода второй гармоники оптического излучения соответственно

## Заключение

Представлены результаты синтеза и применения сегнетоэлектрического кристалла  $\text{LiTaO}_3$  в опто- и акустоэлектронике. Показано, что кристаллы  $\text{LiTaO}_3$  могут быть использованы при создании резонаторов на ОАВ. Продемонстрирована возможность формирования  $180^\circ$ -ных сегнетоэлектрических доменных структур в кристаллах  $\text{LiTaO}_3$  методом прямой электронно-лучевой переполяризации. Показано, что метод электронно-лучевой переполяризации позволяет формировать большие массивы  $180^\circ$ -ных сегнетоэлектрических доменов с заданной шириной доменов. Сформированные доменные структуры могут быть использованы в качестве дифракционных решеток и для удвоения частоты оптического излучения (генерация второй гармоники оптического излучения).

### Библиографический список

1. Campbell, C. Surface acoustic wave devices and their signal processing applications / C. Campbell. – L. : Acad. Press, 1989. – 470 p.
2. Dieulesaint, E. Ondes elastique dans les solides / E. Dieule-saint, D. Royer. – Paris: Masson, 1974. – 339 p.
3. Oliner, A. Poverhnostnye akusticheskie volny / A. Oliner. – M. : Mir, 1981. – 390 p.
4. Rechickii, V. I. Akusticheskie radiokomponenty / V. I. Rechickii. – M. : Radio i svyaz', 1987. – 193 p.

5. Kaino, G. Akusticheskie volny / G. Kaino. – M. : Mir, 1990. – 652 p.

6. Yariv, A. Opticheskie volny v kristallah. / A. Yariv, P. Yuh. – M. : Mir, 1987. – 616 s.

7. Antipov, V. V. Formation of regular structures in the ferroelectric  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$  near the phase transition / V. V. Antipov, A. A. Blistanov, N. G. Sorokin // Sov. Phys. Crystallogr. – 1985. – V. 30. – P. 428—430.

8. Gupta, M. C. Second-harmonic generation in bulk and waveguide  $\text{LiTaO}_3$  with domain inversion induced by electron beam scanning / M. C. Gupta, W. Kozlovsky, A. C. G. Nutt // Ibid. – 1994. – V. 64, N 24. – P. 3210—3212.

9. Yamada, N. First-order quasi-phase matched  $\text{LiNbO}_3$  waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation / N. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, K. Watanabe // Ibid. – 1993. – V. 62, N 1. – P. 435—436.

10. Roshchupkin, D. V. Scanning electron microscopy observation of excitation of the surface acoustic waves by the regular domain structures in the  $\text{LiNbO}_3$  crystals / D. V. Roshchupkin, Th. Fournier, M. Brunel, O. A. Plotitsyna, N. G. Sorokin // Ibid. – 1992. – V. 60, N 19. – P. 2330—2331.

11. Roshchupkin, D. V. Scanning electron microscopy observation of the interaction between the surface acoustic waves and regular domain structures in the  $\text{LiNbO}_3$  crystals / D. V. Roshchupkin, Th. Fournier, M. Brunel., O. A. Plotitsyna, N. G. Sorokin // Scanning Microscopy. – 1992. – V. 6, N 4. – P. 993—996.

12. Dremova, N. N. Zaryadovyj mehanizm formirovaniya metastabil'nogo potencial'nogo kontrasta poverhnostnoi akusticheskoi volny v REM / N. N. Dremova, A. I. Erko, D. V. Roshupkin // Zhurn. tehn. fiziki. – 1988. – T. 58, N 9. – S. 1763—1766.

13. Roshchupkin, D. V. Scanning electron microscopy visualization of surface acoustic wave propagation in a  $\text{LiNbO}_3$  crystal / D. V. Roshchupkin, M. Brunel // Acustica. – 1995. – V. 81. – P. 173—176.

*Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (ГК № 16.513.12.3002).*

УДК 621.318

# ФОРМИРОВАНИЕ БИДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ В ПЛАСТИНАХ МОНОКРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ МЕТОДОМ СТАЦИОНАРНОГО ВНЕШНЕГО НАГРЕВА

**© 2013 г. А. С. Быков, С. Г. Григорян, Р. Н. Жуков, Д. А. Киселев, С. В. Ксенич, И. В. Кубасов, М. Д. Малинкович, Ю. Н. Пархоменко**  
Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС»

Разработан метод создания бидоменной структуры в пластинах монокристаллов ниобата лития, основанный на формировании заданного распределения градиента температуры по толщине образца путем стационарного внешнего нагрева. Нагрев пластины  $\text{LiNbO}_3$ , которая помещается между двумя пластинами кремния, осуществляют за счет поглощения кремнием световой энергии ламп установки светового отжига. Схема технологической ячейки позволяет формировать и регулировать мощности тепловых потоков, входящих в сегнетоэлектрическую пластину с обеих сторон, создавая

градиенты температур, необходимые для управляемого процесса образования двух доменов с направленными друг к другу векторами поляризации (доменная структура «голова к голове»). Экспериментально подтверждена эффективность применения светового поглощения для формирования внешних тепловых источников, при помощи которых можно осуществлять как симметричный, так и асимметричный нагрев, определяющий положение условной поверхности с нулевым температурным градиентом и, следовательно, положение междоменной границы. В пластине  $\text{LiNbO}_3$  толщиной 1,6 мм и длиной 60 мм сформирована симметрич-

ная бидоменная структура с противоположно направленными векторами поляризации. Исследована зависимость изгибной деформации консольно закрепленного образца от электрического напряжения в интервале от  $-300$  до  $+300$  В амплитуда деформации составила более 35 мкм. Показана высокая линейность и повторяемость характеристики «электрическое напряжение — изгибная деформация».

**Ключевые слова:** бидоменная структура, монокристалл ниобата лития, нагрев световым излучением, стационарные тепловые потоки, электромеханические актуаторы.