

УДК 537.226.4

## СВЯЗЬ ОПТИЧЕСКОЙ НЕОДНОРОДНОСТИ МОНОКРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ С РЕАЛЬНОЙ СТРУКТУРОЙ

Н.Ю. Франко

Кафедра физики сегнетоэлектриков и пьезоэлектриков

Показано, что оптическая неоднородность кристаллов  $\text{LiNbO}_3$  связана с их реальной структурой, включающей дислокации, комплексы заряженных дефектов и заряженные доменные границы, которые, как правило, локализованы на дефектах различной рода.

Известно, что в интервале температур 20–200°C кристалл ниобата лития имеет оптическую неоднородность, нестабильно ведущую себя при изменении температуры. Она может быть приобретенной в процессе роста либо индуцированной путем различных внешних воздействий. В настоящее время считается, что появление оптической неоднородности в ниобате лития связано с локальным электрооптическим эффектом, а исчезновение - с экранировкой внутренних электрических полей термоактивированными зарядами. Ранее полагалось, что причиной появления компонент электрического поля, перпендикулярных оси  $Z$ , при нагревании кристалла является пироэлектрический эффект. Возникновение компонент пирополя, перпендикулярных оси  $Z$ , связывалось, например, с блочной разориентацией отдельных областей кристалла [1]. В то же время причины сохранения оптической неоднородности при длительной термостабилизации в условиях отсутствия пироэлектрических полей в известной литературе практически не обсуждались, поэтому вопрос ее проявления в кристаллах ниобата лития, не подвергшихся температурным воздействиям, оставался открытым. Мы предположили, что формирование оптической неоднородности связано с реальной структурой кристалла. Термин "реальная структура кристалла" включает в себя состав кристалла, наличие примесей, дефектную и доменную структуру, т.е. макро- и микродефекты [2].

Для определения оптической неоднородности кристалла использовался метод остаточного светового потока (ОСП), который является мерой оптического качества монокристаллических образцов ниобата лития [1].

При изучении оптической неоднородности кристаллов ниобата лития данным методом обнаружено, что с ростом температуры ОСП возрастает, достигая максимума при  $T = 60\text{--}90$  °C, и затем постепенно падает практически до нуля при температуре 150 °C (рис. 1–4). Мы полагаем, что это является следствием существования в кристалле, по крайней мере, двух процессов, влияющих на экранирование заряженных дефектов в его объеме: процесса экранировки внутренних электрических полей термоактивированными зарядами и процесса «разэкранирования» вследствие миграции данных зарядов в направлении полярной оси за счет возникающего пирополя. Точка экстремума может трактоваться как точка равновесия данных процессов.

На зависимости  $I_{\perp}/I_{\parallel}(T)$ , полученной для кристаллов конгруэнтного состава, нами обнаружен один максимум (рис. 1), который можно объяснить наличием одного доминирующего механизма переноса заряда в объеме

кристаллов ниобата лития. В результате отжига в восстановительной атмосфере с последующим окислением этот пик делится на два (рис. 2), что говорит о появлении второго механизма, ответственного за появление оптической неоднородности.

Исследование гамма- и гамма-нейтронно-облученных кристаллов на оптическую неоднородность показало, что для таких образцов в области первых двух экстремумов (50–90°C) наблюдаются скачкообразные изменения ОСП (рис. 3–4). На наш взгляд, они связаны со скачкообразной перезарядкой локальных областей кристалла. На зависимости  $I_{\perp}/I_{\parallel}(T)$  как для  $\gamma$ -, так и для  $\gamma$ - $n$ -облученных кристаллов ниобата лития наблюдается слабовыраженный третий максимум. Он появляется при дозах облучения  $\geq 10^4$  Р.

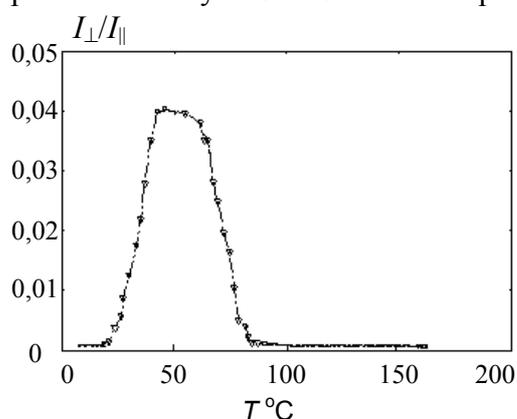


Рис. 1. Зависимость  $I_{\perp}/I_{\parallel}(T)$ , полученная для конгруэнтных кристаллов  $\text{LiNbO}_3$

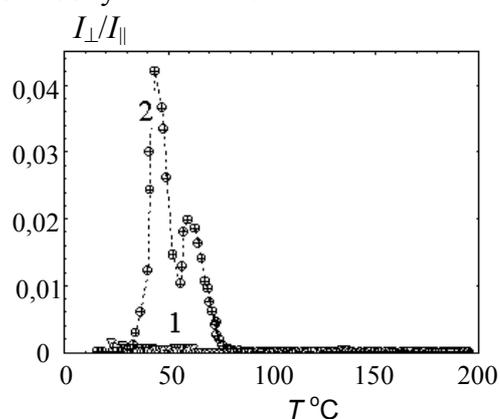


Рис. 2. Зависимости  $I_{\perp}/I_{\parallel}(T)$ , полученные для конгруэнтных кристаллов  $\text{LiNbO}_3$ . 1 - восстановленный кристалл, 2 - окисленный кристалл

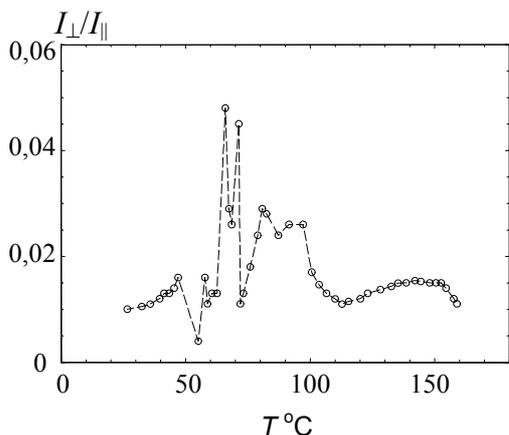


Рис. 3. Зависимость  $I_{\perp}/I_{\parallel}(T)$  для  $\gamma$ -облученного дозой  $10^4$  Р конгруэнтного кристалла  $\text{LiNbO}_3$

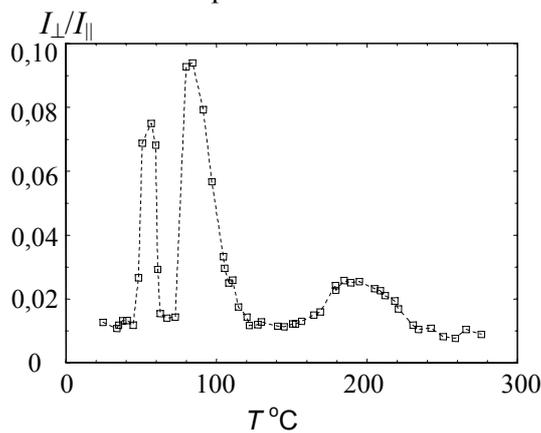


Рис. 4. Зависимость  $I_{\perp}/I_{\parallel}(T)$ , полученная для  $\gamma$ - $n$  облученного конгруэнтного кристалла  $\text{LiNbO}_3$

На Z-срезах кристаллов ниобата лития поляризационно-оптическим методом можно наблюдать сложную картину оптических неоднородностей, появление которых связано с вариацией двулучепреломления на отдельных участках образцов, о чем свидетельствуют данные [3; 4]. Данным методом на

полярных срезах образца чистого и примесного  $\text{LiNbO}_3$  нами обнаружено два типа оптических неоднородностей (наблюдение велось в поляризованном свете на просвет): в виде объемных фигур с темными и светлыми участками (оптическая неоднородность первого типа, рис. 5, а) и светлых точек (оптическая неоднородность второго типа, рис. 5, б).

При нагревании образца до  $60^\circ\text{C}$  наблюдаемые картины становятся более четкими, затем при  $80^\circ\text{C}$  их контрастность уменьшается и полностью исчезает при температурах  $120\text{--}150^\circ\text{C}$ . Сходным образом ведет себя остаточный световой поток. Зависимость  $I_{\perp}/I_{\parallel}(T)$  имеет экстремум в интервале температур от  $70$  до  $90^\circ\text{C}$ , при дальнейшем нагревании исчезает.

Для анализа соответствия наблюдаемых на срезах монокристаллов ниобата лития поляризационно-оптическим методом структур доменной и дефектной структурам образцы подвергались низкотемпературному травлению ( $25\text{--}50^\circ\text{C}$ ). Исследования показали, что в результате травления пластин ниобата лития в тех областях, где визуализируются оптические неоднородности 1-го типа, а зависимость остаточного светового потока от температуры носит ярко выраженный экстремальный характер, выявляются домены антипараллельной ориентации. Как правило, внутри основного домена проявляются отдельные, более мелкие домены размерами до  $400\text{ мкм}$ , границы которых имеют неправильную замкнутую форму (рис. 6).

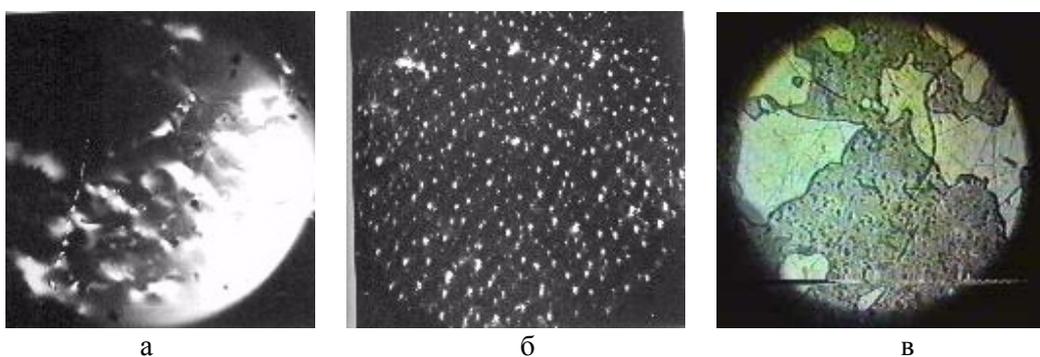


Рис. 5. Оптическая неоднородность, выявляемая поляризационно-оптическим методом на  $Z$ -срезе  $\text{LiNbO}_3+0,1\text{ ат. \% Zn}$ . а - первого типа, б - второго типа, в - доменная структура, выявляемая на поверхности образцов монокристалла  $\text{LiNbO}_3$  методом травления. Увеличение  $\times 25$

В матрице основного домена нами выявлены фигуры травления в виде правильных трех- и шестиугольников или подобные им. На поверхности положительного домена их поверхность была гладкой, а отрицательного – в виде ямки травления. Это говорит о том, что указанные фигуры - микродомены размером до нескольких микрон (рис. 7) [5]. Сопоставление результатов поляризационно-оптических исследований и травления показывает, что этим фигурам травления соответствует оптическая неоднородность второго типа.

Помимо этого выявлены несимметричные ямки травления, которые свидетельствуют о выходе дислокаций под некоторым углом к поверхности

(рис. 8). В областях образца, где наблюдаются данные картины, зависимость  $I_{\perp}/I_{\parallel}(T)$  менее выражена.

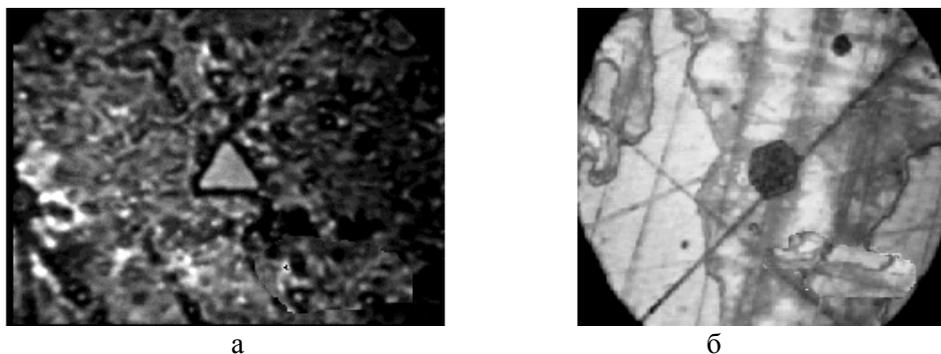


Рис. 7. Фигуры травления в виде правильных треугольников (а) и шестиугольников (б) на поверхности Z-среза кристалла ниобата лития с примесью Zr. Поле зрения ~50 мкм

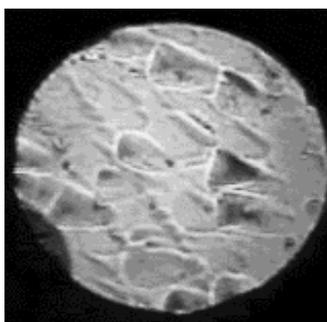


Рис. 8. Фигуры травления, выявляемые на поверхности Z-среза чистого ниобата лития. Поле зрения ~10 мкм

Также на поверхности Z-срезов ниобата лития, в тех областях, где не визуализируется ни та ни другая неоднородность, а зависимость  $I_{\perp}/I_{\parallel}(T)$  проявляется слабо, наблюдаются фигуры травления округлой формы, соответствующие комплексам точечных дефектов и, возможно, связанные в ниобате лития с наличием примесей (рис. 9).

Таким образом, оптическая неоднородность кристаллов ниобата лития связана с их реальной структурой, т.е. с локальными нарушениями кристаллического строения, к которым относятся дислокации, комплексы заряженных дефектов, а также заряженные доменные стенки, которые, как правило, локализованы на дефектах различного рода. Причиной возникновения оптической неоднородности в кристаллах ниобата лития является локальный электрооптический эффект, т.е. электрические поля, возникающие на этих дефектах и имеющие компоненты, перпендикулярные полярной оси. Исчезновение оптической неоднородности при температурах выше 150°C связано с термической активацией носителей зарядов и экранировкой этих полей.

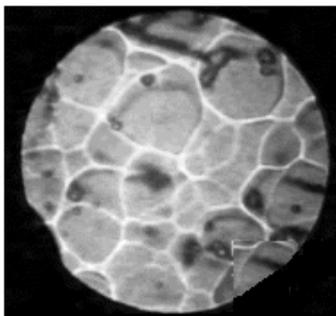


Рис. 9. Фигуры травления округлой формы, выявляемые на поверхности чистого ниобата лития. Поле зрения ~10 мкм

Следовало ожидать, что подобные механизмы должны существовать и в других материалах, в том числе в изоморфных ниобату лития. Однако подобное поведение оптической неоднородности либо не наблюдается, либо слабо выражено (танталат лития). Можно предположить, что возникновение оптической неоднородности в ниобате лития в значительной степени определяется согласованным смещением ионов ниобия в направлениях, перпендикулярных оси  $Z$ , в местах локализации дефектов кристаллической структуры. Такой подход, на наш взгляд, объясняет отличие поведения оптической неоднородности в кристаллах ниобата лития от изоморфных ему материалов. Например, по сведениям авторов [6], в кристаллах танталата лития не наблюдается хаотического разупорядочения ионов тантала.

Работа выполнена при поддержке проектов РФФИ 01-02-16511 и NWO 16-04-1999. Благодарю Педько Б.Б. за научное руководство и участие в работе.

#### Литература

1. Блистанов А.А., Гераськин В.В., Кудасова С.В. Влияние электрического поля на оптическую неоднородность  $\text{LiNbO}_3$  // Кристаллография. 1981. Т. 26, № 2. С. 56-361.
2. Косевич В.М., Палатник Л.С. Электронно-микроскопические изображения дислокаций и дефектов упаковки. М.: Наука, 1976.
3. Яруничев В.П., Березовская Г.С. Выявление доменной структуры ниобата лития поляризационно-оптическим методом // Изв. АН БССР. Сер. физ.-мат. наук. 1979. Т. 5. С. 126-128.
4. Братищенко В.И., Педько Б.Б., Рудяк В.М., Яруничев Е.П. Кинетика поведения оптических неоднородностей в чистых и примесных монокристаллах ниобата лития в интервале температур 20-200°C // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1984. Т. 48, № 6. С. 1213-1216.
5. Пшеничников Ю.П. Выявление тонкой структуры кристаллов. М.: Metallургия, 1974.
6. Кузьминов Ю.С. Электрооптический и нелинейнооптический кристалл ниобата лития. М.: Наука, 1987.