

УДК 537.226.4

## ВЛИЯНИЕ ПРИМЕСИ НИОБИЯ НА ПРОЦЕССЫ ПЕРЕСТРОЙКИ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ МОНОКРИСТАЛЛОВ ТИТАНАТА БАРИЯ

Н.Н. Большакова, О.В. Большакова, В.В. Иванов, Т.И. Иванова,  
Н.Н. Черешнева

Тверской государственной университет,  
кафедра физики сегнетоэлектриков и пьезоэлектриков

В работе приведены результаты исследования процессов перестройки доменной структуры ниобийсодержащих кристаллов титаната бария в изменяющихся электрических полях, соответствующих ступенчатому прохождению кривой поляризации.

Свойства сегнетоэлектрических материалов в значительной степени зависят от разного рода дефектов, к которым следует отнести и примеси, внедренные при росте кристаллов. Введение примесей в  $\text{BaTiO}_3$  вызывает образование твердого раствора [1], вследствие чего изменяются силы связи между ионами элементарной ячейки, её параметры и сегнетосвойства кристалла. В настоящей работе представлены результаты исследования процессов переключения кристаллов  $\text{BaTiO}_3$  с примесью ниобия под воздействием электрического поля, приложенного в направлении [001].

Объектами исследования выбраны монокристаллы чистого и ниобийсодержащего титаната бария в виде пластин толщиной от 0,1 до 0,3 мм, выращенных методом Ремейки в расплаве  $\text{KF}$  [1]. Концентрации примеси  $\text{Nb}^{5+}$  составляли 0,1; 0,3; 0,9 мол. % в расплаве.

Исследования проведены методами электрического эффекта Баркгаузена и поляризационно-оптическим [2]. Визуализация доменной структуры осуществлялась в направлении [001] в проходящем поляризованном свете при комнатной температуре. Электрическое поле прикладывалось к образцам в направлении [001]. Его изменение соответствовало ступенчатому прохождению кривой поляризации. Наблюдение формы скачков Баркгаузена проводилось с помощью платы серии L-783, выпущенной ЗАО "Л-Кард".

Установлено, что исходная доменная структура ниобийсодержащих кристаллов преимущественно состоит из мелких  $a$ -доменов (рис. 1). В отличие от беспримесного кристалла  $\text{BaTiO}_3$ , разбитого на крупные  $a$  и  $c$ -доменные блоки, доля  $c$ -доменов в пластинке  $\text{BaTiO}_3:\text{Nb}^{5+}$  незначительна.

Одновременно с наблюдением производилось фотографирование изменяющейся под воздействием электрического поля доменной структуры. Соответствующие результаты представлены на рис. 2.

Видно, что с ростом напряженности приложенного электрического поля до  $E \approx 15 \text{ кВ}\cdot\text{см}^{-1}$  происходит  $c$ -доменизация образца. При этом в увеличении  $c$ -доменной области, по-видимому, принимают участие домены с вектором  $\mathbf{P}_s$ , сонаправленным приложенному электрическому полю. Аналогичные результаты получены и для ниобийсодержащих кристаллов.

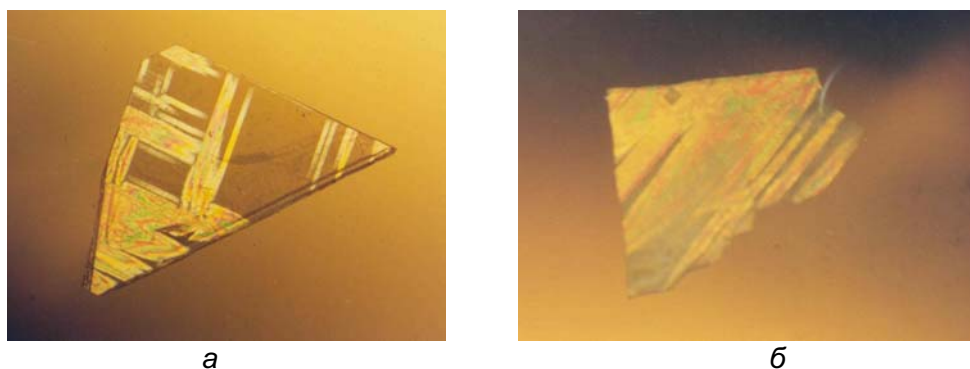


Рис. 1. Исходная доменная структура кристалла  $\text{BaTiO}_3:\text{Nb}^{5+}$ :  $c = 0$  (а);  $c = 0,3$  мол. % (б)

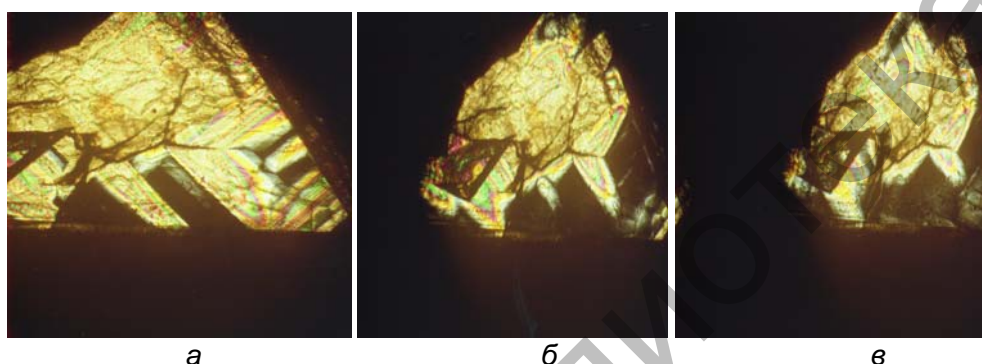


Рис. 2. Изменение доменной структуры кристалла  $\text{BaTiO}_3$  под воздействием электрического поля:  $E = 0$  (а);  $E = 15$  (б);  $E = 25 \text{ кВ}\cdot\text{см}^{-1}$  (в)

При исследовании процессов переключения  $\text{BaTiO}_3:\text{Nb}^{5+}$  во всевозрастающих электрических полях фиксировалось время перестройки визуально наблюдаемой доменной структуры (рис. 3), которая одновременно является сегнетоэлектрической и сегнетоэластической.

Разброс значений времени перестройки доменной структуры в разных полях, по-видимому, связан как с неравномерностью движения, так и с различной подвижностью стенок  $a$  и  $c$ -доменов. Ниобийсодержащий кристалл  $\text{BaTiO}_3$  обладает преимущественно  $a$ -доменной структурой как в исходном состоянии, так и в состояниях, соответствующих остаточной поляризации. Примесь ниобия создает условия для возникновения  $a$ -доменной структуры, которая является наиболее жесткой и менее податливой к воздействию электрического поля в направлении  $[001]$ , что коррелирует с результатами работ [3–5].

Известно, что поляризационно-оптическим методом фиксируется перестройка сегнетоэластической доменной структуры кристаллов. Реориентация  $180^\circ$  доменов в  $[001]$  этим методом не визуализируется. Поэтому процессы полного переключения кристаллов  $\text{BaTiO}_3:\text{Nb}^{5+}$  изучены методом эффекта Баркгаузена. Соответствующие результаты представлены на рис. 4.

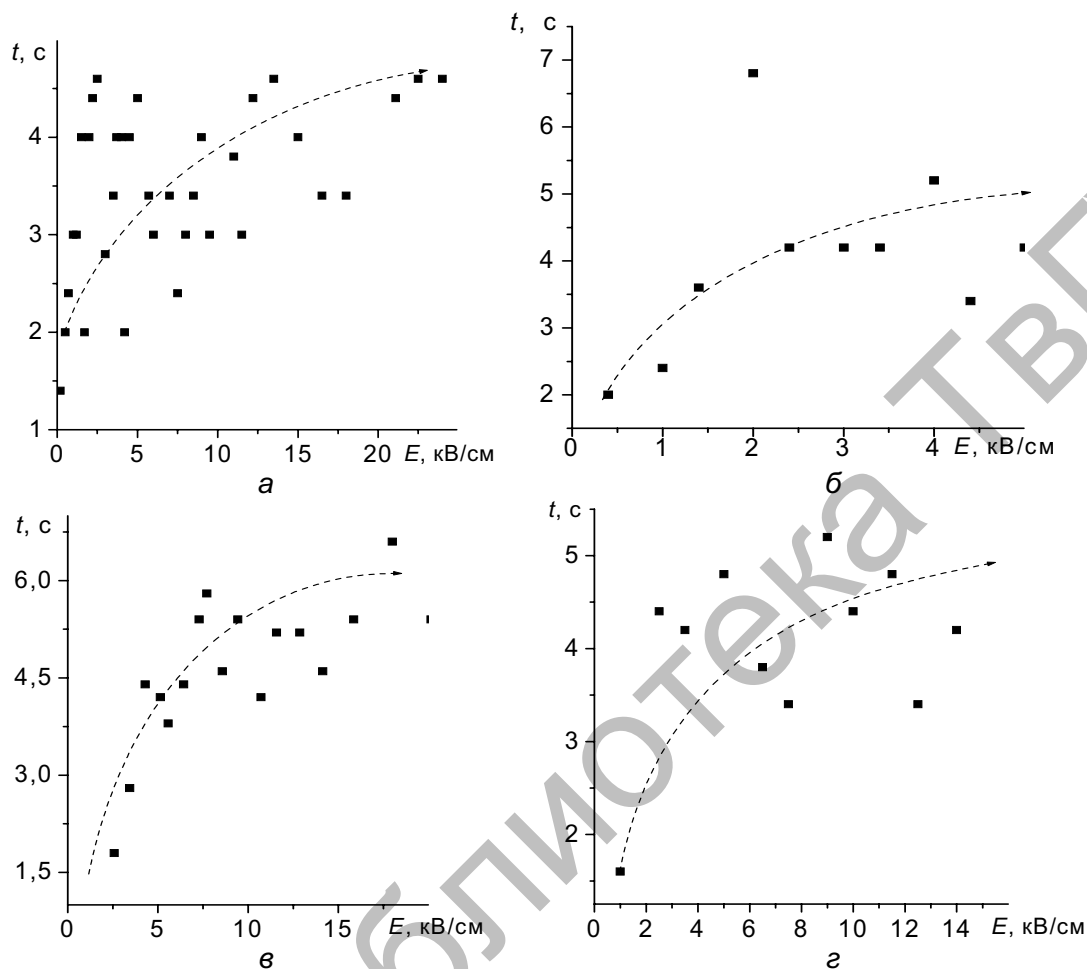


Рис. 3. Полевые зависимости времени перестройки доменной структуры кристаллов  $BaTiO_3:Nb^{5+}$ , полученные при изменении электрического состояния образца по кривой поляризации.  $c = 0$  (а); 0,1 (б); 0,3 (в); 0,9 мол. % (г)

Видно, что с ростом приложенного к образцу поля от 0 до  $10 \text{ кВ}\cdot\text{см}^{-1}$  число скачков увеличивается, что свидетельствует о переключении доменов в направлении поля. С дальнейшим ростом поля эти процессы становятся менее интенсивными. Для образцов с концентрациями  $Nb^{5+}$   $c = 0$ ; 0,3 и 0,9 мол. % процесс поляризации в направлении поля заканчивается в полях  $E \approx 25 \text{ кВ/см}$ , а для  $BaTiO_3:Nb^{5+}$  ( $c = 0,1$  мол. %) – в существенно меньших полях  $E \approx 12 \text{ кВ/см}$ . Это можно объяснить различной величиной коэрцитивных полей для этих кристаллов, составляющих 6,3; 1,1; 5,8; 2,1  $\text{кВ}\cdot\text{см}^{-1}$  для концентраций  $c = 0$ , 0,1, 0,3 и 0,9 мол. %  $Nb^{5+}$  соответственно. Визуальные наблюдения показывают, что процессы перестройки сегнетоэластической доменной структуры для всех исследованных кристаллов заканчиваются в полях  $\sim$  в 2 раза меньших, чем всей доменной структуры.

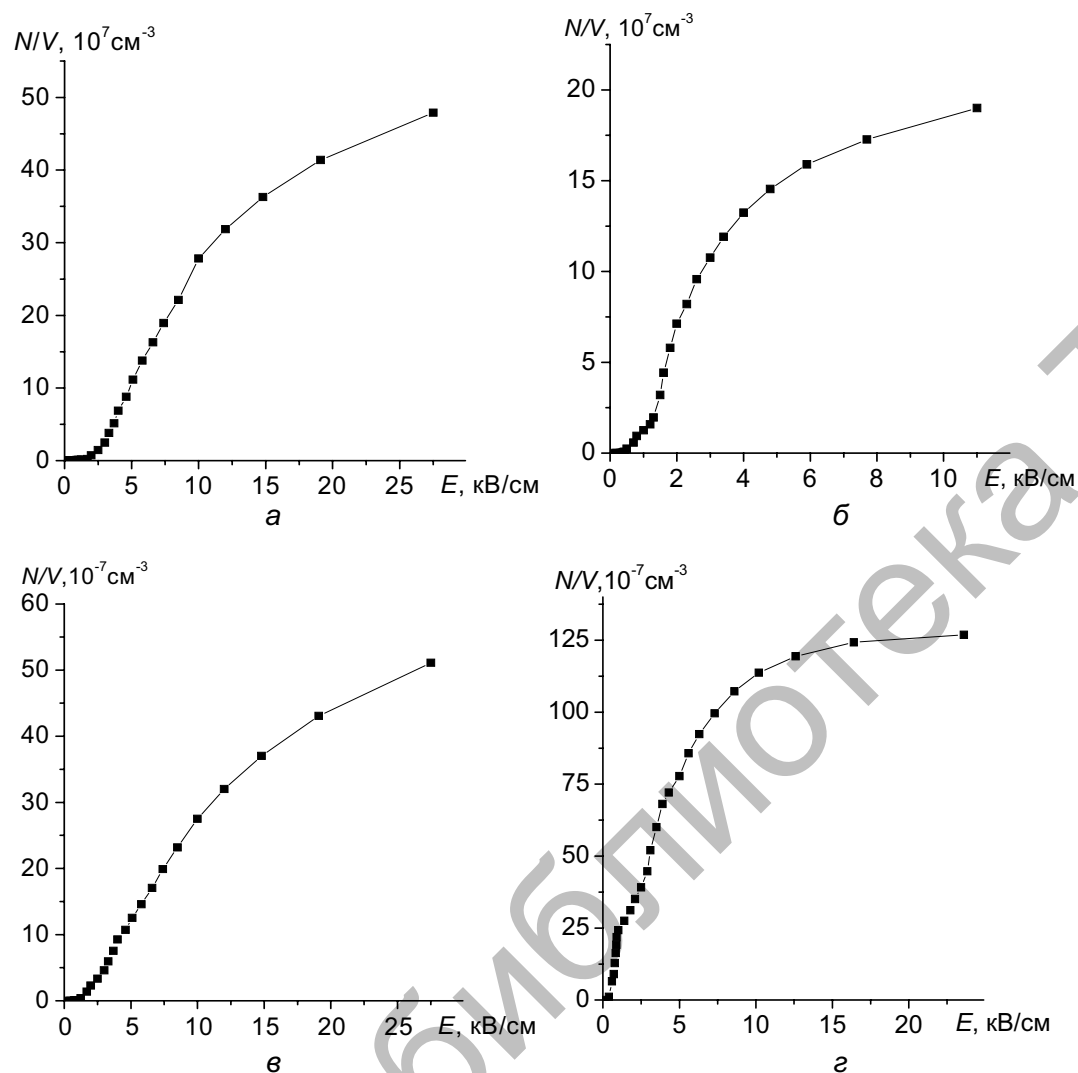


Рис. 4. Полевые распределения объемной плотности числа скачков переключения, полученные для кристаллов  $\text{BaTiO}_3:\text{Nb}^{5+}$ :  $c = 0$  (а); 0,1 (б); 0,3 (в); 0,9 мол. % (г)

Результаты оценки размера  $\Delta P_{\text{ср}}$ , длительности скачка переключения  $\tau_{\text{ср}}$  объема, переполаризующегося при одном скачке  $\Delta V_{\text{ср}}$ , доли общих объемов образцов, переключающихся при одном скачке  $\beta$  и при прохождении кривой поляризации  $\eta$  представлены для исследуемых кристаллов в таблице.

Согласно данным [2], с ростом толщины образца увеличивается и средний размер области, переполаризующейся при скачке Баркзаузена. Нами такой зависимости обнаружено не было. Все рассчитанные параметры для исследованных кристаллов примерно одинаковы и определенной их концентрационной зависимости не наблюдается.

$d, 10^{-3}$ см	$c$ , мол. %	$\Delta P_{\text{ср}}, 10^{-14}$ Кл·см	$\Delta V_{\text{ср}}, 10^{-9}$ , см <sup>3</sup>	$\tau_{\text{ср}}$ , мкс	$\beta, 10^{-4}\%$	$\eta, \%$
12	0	1,0	0,8	0,4	0,5	2,0
30	0,1	1,3	1,1	0,3	0,2	1,0
12	0,3	0,8	1,05	0,4	0,7	2,5
14	0,9	1,2	1,1	0,4	0,7	9,0

Согласно литературным данным [4], при введении в расплав примеси ниобия ионы  $\text{Nb}^{5+}$  замещают ионы  $\text{Ti}^{4+}$ , что существенно влияет на физические свойства кристаллов  $\text{BaTiO}_3:\text{Nb}^{5+}$ , в которых образуется сетчатая  $a$ -доменная структура, стабилизированная внутренними механическими напряжениями. При их переполяризации появляется двойная петля диэлектрического гистерезиса,  $90^\circ$  переориентация  $\mathbf{P}_s$  происходит в полях, превышающих  $E_{\text{кр}} = 3 \dots 5 \text{ кВ}\cdot\text{см}^{-1}$ .

Наблюдение петель диэлектрического гистерезиса для исследованных в данной работе кристаллов показало, что они имеют типичный для титаната бария вид, перетяжек петель не обнаружено. Кристаллы переполяризуются в полях, меньших  $E_{\text{кр}}$ , их доменная структура преимущественно состоит из  $a$ -доменов. Присутствие в образцах  $c$ -доменов, по-видимому, связано с небольшими концентрациями примеси  $\text{Nb}^{5+}$  от 0,1 до 0,9 мол. %, что согласуется с данными [5].

#### Список литературы

1. Бурсиан Э.В. Нелинейный кристалл титанат бария. М.: Наука, 1974.
2. Рудяк В.М. Процессы переключения в нелинейных кристаллах. М.: Наука, 1986.
3. Синяков Е.В. Титанат бария. М.: Наука, 1973.
4. Кудзин А.Ю. Электрофизические явления в монокристаллах твердых растворов на основе титаната бария // Автореф. дис. ... д-ра физ. мат. наук. Воронеж: ВГУ, 1978 г.
5. Черешнева Н.Н. Процессы переключения ниобий-содержащих кристаллов титаната бария // Изв. РАН. 2003. Т. 67, № 8. С. 1142–1144.