

ДИНАМИЧЕСКАЯ ПРИРОДА НЕСОРАЗМЕРНЫХ СТРУКТУР В ТВЕРДЫХ РАСТВОРАХ АНТИСЕГНЕТОЭЛЕКТРИК/СЕГНЕТОЭЛЕКТРИК

С. Б. Вахрушев¹, Ю. А. Бронвальд¹, К. А. Петрухно¹,
А. В. Филимонов^{2,3}, И. П. Раевский⁴

¹⁾ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе,
Политехническая ул., 26, 194021 Санкт-Петербург, Россия,
e-mail: s.vakhrushev@mail.ioffe.ru

²⁾ Академический университет им. Ж.И. Алфёрова РАН,
ул. Хлопина, 8, 194021 Санкт-Петербург, Россия

³⁾ Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Политехническая ул., 29, 195251 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: filimonov@rphf.spbstu.ru

⁴⁾ Южный Федеральный Университет, ул. Б. Садовая, 105/42 344006 г Ростов-на-Дону, Россия
e-mail: igorraevsky@gmail.com

Твердые растворы антисегнетоэлектрик/сегнетоэлектрик (АСЭ/СЭ) и релаксор/антисегнетоэлектрик характеризуются существованием большого числа модулированных, в частности несоизмерных фаз. Принципиальным является вопрос о природе таких состояний. В работе приведены результаты систематического изучения критической динамики $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$ (PZT) и $(\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3)_{1-x}(\text{PbSc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3)_x$ (PMN-PSN) с использованием неупругого и диффузного рассеяния рентгеновского (синхротронного) излучения. Показано, что все многообразие возникающих структур может быть объяснено существованием двух мягких мод в центре и М-точке Зоны Бриллюэна с поперечной акустической модой.

Ключевые слова: антисегнетоэлектрик; мягкие моды; рассеяние синхротронного излучения.

DYNAMIC ORIGIN OF THE INCOMMENSURATE PHASES IN THE ANTIFERROELECTRIC/FERROELECTRIC SOLID SOLUTION

S. B. Vakhrushev¹, Yu. A. Bronwald¹, K. A. Petroukhno¹,
A. V. Filimonov^{2,3}, I. P. Raevsky⁴

¹⁾ Ioffe Institute Polytekhnicheskaya str. 26 194021 St. Petersburg, Russia

²⁾ Alferov University, Khlopina str. 8 194021 St. Petersburg, Russia

³⁾ Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
Polytekhnicheskaya str. 29 195251 St. Petersburg, Russia

⁴⁾ Southern Federal university, Bolshaya Sadovaya Str., 105/42, 344006, Rostov-on-Don, Russia
Corresponding author: S. B. Vakhrushev (s.vakhrushev@mail.ioffe.ru)

Antiferroelectric/ferroelectric (AFE/FE) and relaxor/antiferroelectric solid solutions are characterized by the existence of a large number of modulated, in particular, incommensurate phases. The question of the nature of such states is fundamental. The paper presents the results of a systematic study of the critical dynamics of $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$ (PZT) and $(\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3)_{1-x}(\text{PbSc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3)_x$ (PMN-PSN) using inelastic and diffuse X-ray (syn-

chrotron) scattering. It is shown that the entire variety of emerging structures can be explained by the existence of two soft modes at the center and M-point of the Brillouin zone with a transverse acoustic mode.

Key words: antiferroelectric; relaxor; modulated structures; synchrotron radiation scattering.

ВВЕДЕНИЕ

Растущий интерес к антисегнетоэлектрическим материалам и их твердым растворам требует решения вопроса о микроскопической динамической природе фазовых превращений в этих соединениях. В предыдущем докладе [1] были подробно рассмотрены различные типы наноструктур, формируемых в твердых растворах АСЭ/СЭ. Для выявления микроскопической природы наблюдаемого многообразия фаз и переходов между ними требуется детальное исследование фоновой динамики во многих точках Зоны Бриллюэна (ЗБ). Такое исследование стало возможным лишь недавно, поскольку вследствие малых размеров монокристаллов их изучение методом неупругого рассеяния нейтронов оказывается невозможным. Нами был использован активно развивающийся в последние годы метод неупругого рассеяния синхротронного излучения.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Монокристаллы PZT и PMN-PSN35 были выращены в Южном Федеральном Университете по методикам, описанным в [2, 3]. Образцы прямоугольной формы вырезались из монокристалла большего размера, шлифовались и протравливались в кипящей соляной кислоте. Измерения проводились на спектрометре, установленном на линии ID28 Европейского синхротронного источника (ESRF). Измерения неупругого рассеяния проводилась при энергии излучения 21.747 keV (монохроматор Si(11,11,11), разрешение по энергии ≈ 1.7 meV). Диффузное рассеяние в PMN-PSN35 измерялось при энергии 20.6 keV. Нагрев осуществлялся с струей азота, с использованием Cryostream 700 Plus. Точность поддержания температуры составляла ≈ 1 K.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Проведенные нами исследования выявили существование в исследованных кристаллах трех «основных» мягких мод: (1) - сегнетоактивная поперечная оптическая мода в центре ЗБ и антиферродисторсионные (АФД) мягкие моды на границе ЗБ. Нами было показано, что формирование антисегнетоэлектрической структуры в чистом цирконате свинца и твердых растворах и несоразмерных структур в цирконате свинца при высоком давлении может быть соотносено с существованием флескоэлектрического взаимодействия между поперечной оптической (ТО) и поперечной

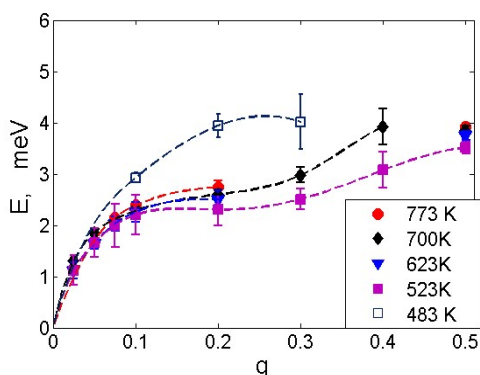


Рисунок 1. Дисперсионная кривая ТА фононов в $\text{PbZr}_{0.993}\text{Ti}_{0.007}\text{O}_3$ в направлении $(q \parallel q_0)$

акустической (ТА) модами. В результате такого взаимодействия формируется «прогиб» на дисперсионной кривой ТА моды (рис. 1). Положение прогиба определяет вектор модуляции. В случае антисегнетоэлектрического перехода вектор модуляции фиксируется на значении $(\frac{1}{4} \frac{1}{4} 0)$, за счет «Umklapp» взаимодействия [4, 5].

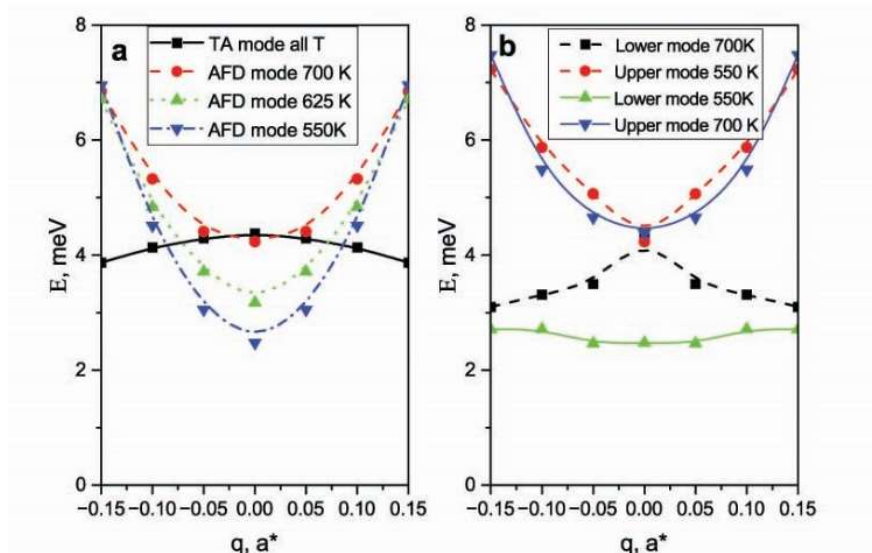


Рисунок 2. Дисперсионные кривые неперенормированных (а) и смешанных АФД и ТА фононных мод в $\text{PbZr}_{0.763}\text{Ti}_{0.024}\text{O}_3$ (б) в окрестности М-ЗБ

Формирование структур с вектором модуляции в окрестности М-точки ЗБ объясняется взаимодействием АФД мягкой моды, связанной с разворотами кислородных октаэдров. На рис. 2, а показаны фононные дисперсионные кривые неперенормированных АФД и ТА мод. Видно, что эти кривые должны пересекаться, однако, такое пересечение ветвей с одинаковой симметрией запрещено. В результате возникает неизбежное межмодовое взаимодействие, приводящее к перенормировке дисперсионных кривых (рис. 2, б) и возникновению смешанной моды с собственными векторами представляющими собой линейную комбинацию собственных векторов АФД и ТА мод [5]. По мере приближения к температуре перехода дисперсионная кривая нижней смешанной моды выполаживается, что приводит к возникновению неустойчивости в несоразмерной позиции и переходу в несоразмерную фазу, обнаруженному нами ранее в $\text{PbZr}_{0.993}\text{Ti}_{0.007}\text{O}_3$ [6].

На основании развитой модели межмодового взаимодействия нами были проведены расчеты распределения интенсивности диффузного рассеяния в обратном пространстве. Показано хорошее согласие с экспериментальными данными для ряда твердых растворов PZT. Было проанализировано поведение диффузного рассеяния в соединениях PMN-PSN и были обнаружены эффекты также объясняемые в рамках развитой модели.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Были проведены исследования критической динамики в ряде твердых растворов антисегнетоэлектрик/сегнетоэлектрик и релаксор/антисегнетоэлектрик. Полученные экспериментальные результаты обработаны в рамках модели межмодового взаимодействия. Показано, что такое взаимодействие приводит к возникновению структурной неустойчивости при несоразмерных волновых векторах. На основании указанного подхода разработана модель, описывающая распределение диффузного рассеяния в обратном пространстве. Проанализировано диффузное рассеяние PMN-PSN и подтверждено существование смешанной неустойчивой моды в окрестности М-точки.

БЛАГОДАРНОСТИ

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-12-00328, <https://rscf.ru/project/22-12-00328/>

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЕ ССЫЛКИ

1. Филимонов А. В. и др. Нанонеоднородные структуры в твердых растворах антисегнетоэлектриков и релаксоров // Доклад на этой конференции.
2. Леонтьев Н., Смотраков В. Г., Фесенко Е. Г. Фазовая диаграмма $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$, при $x < 0,1$ // Известия Академии наук СССР. Неорганические материалы, 1982, т. 18, вып. 3, с. 449.
3. Раевский И. П., и др. Выращивание и исследование монокристаллов твердых растворов сегнетоэлектриков-релаксоров $(1-x)\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3-x\text{PbSc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3$ с различной степенью композиционного упорядочения // Кристаллография, 2003, том 48, № 3, 6, с. 506.
4. Tagantsev A. K., Vaideeswaran K., Vakhrushev S. B., Filimonov A. V., Burkovsky R. G., Shaganov A., Andronikova D., Rudskoy A. I., Baron A. Q. R., Uchiyama H., Chernyshov D., Bosak A., Ujma Z., Roleder K., Majchrowski A., J.-H. Ko, Setter N. The origin of antiferroelectricity in PbZrO_3 // Nature Communications 2013 4, Article number: 2229.
5. Burkovsky R. G., Bronwald Yu., Andronikova D., Wehinger B., Krisch M., Jacobs J., Gambetti D., Roleder K., Majchrowski A., Filimonov A. V., Rudskoy A. I., Vakhrushev S. B., Tagantsev A. K. Critical scattering and incommensurate phase transition in antiferroelectric PbZrO_3 under pressure // Scientific Reports. 2017. 7, 41512.
6. Filimonov A. et al., Mode Coupling at around M-Point in PZT // Materials, 2022, vol 15 #79.
7. Andronikova D. A., Bronwald Iu. A., Leontiev I. N., Leontiev N. G., Chernyshov D. Yu., Filimonov A. V., Vakhrushev S. B. Incommensurate instability and diffuse scattering at Brillouin zone boundary in Zr-rich lead zirconate titanate // Ferroelectrics. 2019, Vol. 538, P. 65–73.

ФОРМИРОВАНИЕ КОНТАКТНЫХ СОЕДИНЕНИЙ ФОТОПРИЕМНОЙ МАТРИЦЫ С КРЕМНИЕВЫМ МУЛЬТИПЛЕКСОРОМ

А. Э. Видрицкий¹, В. Л. Ланин²

¹⁾ ОАО «ИНТЕГРАЛ» - управляющая компания холдинга «ИНТЕГРАЛ», Корженевского 16, Минск, Беларусь, e-mail: AVidritskiy@integral.by

²⁾ Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники, Минск, Беларусь, e-mail: Vlanin@bsuir.by

Рассмотрен процесс формирования контактных соединений фотоприемной матрицы (ФПМ) и кремниевого мультиплексора (КМ) методом перевернутого кристалла (Flip-chip), когда каждый фоточувствительный p - n -переход ФПМ соединяется со своей входной ячейкой КМ через столбики связи – бампы. В качестве материала столбиков применен индий благодаря его хорошей адгезии к контактным площадкам