

## АКУСТИКА И МОЛЕКУЛЯРНАЯ ФИЗИКА

УДК 534.222

**ЭЛЕКТРОАКУСТИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В МОНОКРИСТАЛЛЕ  
ТИТАНАТА СТРОНЦИЯ ПРИ СТРУКТУРНОМ ФАЗОВОМ  
ПЕРЕХОДЕ****А. И. Коробов, Ю. А. Бражкин, Н. И. Одина**

(кафедра акустики)

E-mail: akor@acs465a.phys.msu.ru

Приводятся результаты экспериментального исследования особенностей электроакустического эффекта в монокристалле титаната стронция в области структурного фазового перехода при  $T \approx 103$  К. Проведено измерение скорости распространения продольных ультразвуковых волн частоты 30 МГц как функции внешнего электрического поля  $E$ . В функциональной зависимости скорости звука от напряженности электрического поля был обнаружен постепенный переход от квадратичной зависимости к линейной при понижении температуры и приближении ее к  $T \approx 103$  К. Появление в области перехода линейного вклада связывается с отклонением симметрии решетки от кубической, вызванным дефектами.

Титанат стронция  $\text{SrTiO}_3$  — кристалл со структурой типа перовскита [1] является интересным и востребованным объектом как в прикладном отношении (например, он используется в качестве подложки при выращивании ВТСП-пленок [2]), так и в фундаментальном. В титанате стронция обнаруживаются все новые особенности, среди которых наряду с переходом в квантовое параэлектрическое состояние [3] необходимо отметить и аномалии различных физических параметров в области структурного фазового перехода из кубической фазы  $O_h$  в тетрагональную  $D_{4h}$  в области температур порядка 105 К [4]. Этот структурный фазовый переход второго рода не является сегнетоэлектрическим — кислородные октаэдры  $\text{TiO}_6$  поворачиваются вокруг одной из осей  $\langle 100 \rangle$ , создавая тетрагональные домены трех типов, но не создавая дипольного момента [5]. Переход хорошо описывается теорией смягчения фононной моды [6]. Тетрагональное искажение, определенное с помощью дифракции нейтронов, очень мало ( $c/a \approx 1.0009$  при 10 К, где  $a, c$  — параметры решетки) [7].

При комнатной температуре титанат стронция принято относить к классу  $m3m$ , который, как известно, имеет центр симметрии (ниже температуры фазового перехода титанат стронция относится к классу  $4/mmm$ , который также имеет центр симметрии) [8]. Однако при изучении двулучепреломления и рентгеновских измерениях в титанате стронция [9] было высказано предположение, что кристаллическая решетка более симметричной фазы титаната стронция не является совершенно кубической, отношение параметров решетки даже при комнатной температуре не равно единице:  $c/a = 1.00008$ . Исследования электромеханических свойств  $\text{SrTiO}_3$ , проведенные в [10], подтвердили эти наблюдения и

показали, что титанат стронция имеет незначительный, но различимый пьезоэлектрический эффект.

Дальнейшие исследования выявили аномальное поведение в области фазового перехода различных параметров, таких как тепловое расширение, теплоемкость, скорость и поглощение звука [11]. Среди них можно отметить работу [12], обнаружившую при температуре  $T_c + 1$  К наличие структурной перестройки, которая заключается в возникновении больших (размерами порядка 250 нм) зародышей тетрагональной фазы. В работе [13] обнаружено влияние формы, размеров и механического состояния образца на поведение теплового расширения в области структурного фазового перехода. Надо отметить различие в наблюдавшихся разными авторами особенностях, которое объясняется большим влиянием на физические свойства кристалла примесей (особенно в области фазового перехода), а также дефектов, возникающих в процессе роста, обработки и измерений [14]. Так, значения температуры фазового перехода, определенные для двух различных срезов образцов, вырезанных из одной булы, отличаются и составляют  $T_c \approx 105.86 \pm 0.07$  К и  $T_c \approx 105.33 \pm 0.07$  К [15]. Эти факты указывают на то, что особенности структурного фазового перехода в кристаллах титаната стронция изучены недостаточно и требуются дополнительные экспериментальные исследования.

Нами проведены экспериментальные исследования электроакустического эффекта в монокристалле титаната стронция в диапазоне температур 102.3–109 К. Электроакустический эффект заключается во взаимодействии постоянного электрического поля с акустическими волнами (АВ) в твердых телах, в результате которого происходит изменение скорости АВ. В общем случае относительное изме-

нение скорости АВ в твердом теле при приложении электрического поля определяется выражением:

$$\Delta v/v = [e^*E + f^*E^2] / 2\rho v^2, \quad (1)$$

где  $\rho$  — плотность кристалла,  $v$  — скорость АВ,  $\Delta v$  — изменение скорости АВ при приложении электрического поля  $E$ ,  $e^*$  — эффективный пьезоэлектрический коэффициент, определяемый компонентами тензоров пьезоэффекта 3-го и 5-го порядков,  $f^*$  — эффективный коэффициент электрострикции, определяемый компонентами тензоров электрострикции 4-го и 6-го порядков [16].

В пьезоэлектрических кристаллах, в которых отсутствует центр симметрии, величина электроакустического эффекта определяется в основном коэффициентом  $e^*$  и изменение скорости АВ линейно по электрическому полю. В centrosymmetric кристаллах, в которых пьезоэффект отсутствует, наблюдается квадратичная зависимость скорости от электрического поля, определяемая вторым членом  $f^*$  в правой части (1). В пьезоэлектрических материалах с большими значениями диэлектрической проницаемости (например, в пьезоэлектрических керамиках) вклады пьезоэлектрического и электрострикционного механизмов оказываются сравнимыми [17].

Для исследования взят образец титаната стронция в форме прямоугольного параллелепипеда размерами  $20 \times 8 \times 8$  мм, который был вырезан из монокристалла, выращенного по методу Вернейля. Грани образца ориентированы вдоль направлений  $[001]$ ,  $[110]$ ,  $[1\bar{1}0]$  с точностью не хуже одного градуса. В направлении  $[001]$  в монокристалле возбуждалась продольная АВ с использованием пьезопреобразователя из ниобата лития с резонансной частотой 30 МГц. С помощью металлических контактов (медь, серебро, хром), напыленных на боковые грани, к образцу прикладывалось постоянное электрическое поле в направлении  $[110]$ . Проведенные тестовые измерения показали, что результаты измерений не зависели от типа металла, нанесенного на образец. Измерение реверсивной зависимости относительного изменения скорости АВ от величины электрического поля проводилось на частоте 30 МГц в импульсном режиме методом фиксированной задержки. При медленном охлаждении образца от 300 до 110 К наблюдалась квадратичная зависимость скорости АВ от электрического поля. Начиная с температуры 109 К наряду с квадратичным был обнаружен линейный по электрическому полю вклад в изменение скорости АВ, величина которого увеличивалась с понижением температуры. При этом вклад электрострикционного члена, квадратичного по электрическому полю, сильно уменьшался (рис. 1).

При дальнейшем понижении температуры затухание АВ резко увеличивалось, и измерения прекращались. Скорость охлаждения в области температур 110–102.3 К не превышала одного градуса в час.

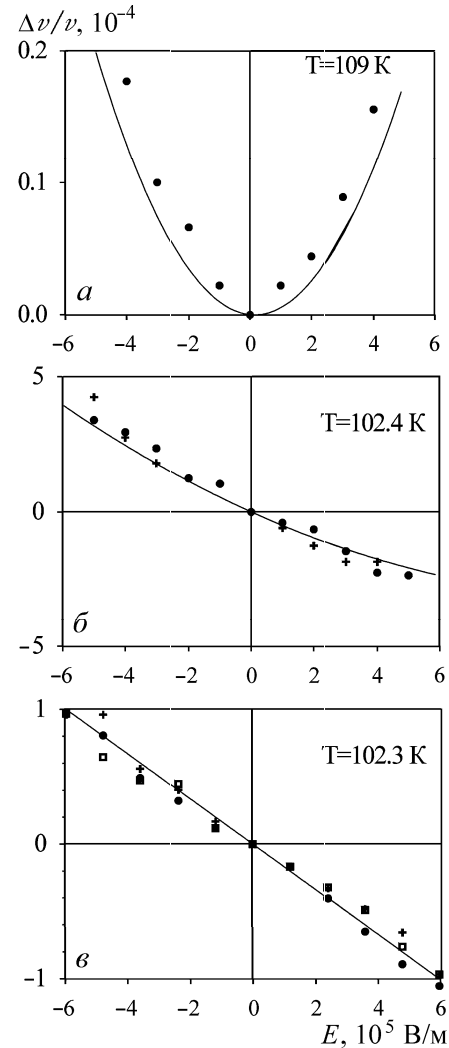


Рис. 1. Зависимость относительного изменения скорости акустических волн от величины приложенного электрического поля при различных температурах. Сплошной линией показана аппроксимация экспериментальных точек зависимостью (1). Крестики, кружки и квадраты при 102.3 и 102.4 К (б, в) соответствуют прямому и обратному ходу по полю

Необходимо отметить, что гистерезисных явлений при измерении зависимости скорости акустических волн от электрического поля в пределах погрешности измерений нами не наблюдалось.

Далее была проведена аппроксимация экспериментальных зависимостей относительного изменения скорости полиномом второй степени (1). Аппроксимирующие кривые проведены на рис. 1 сплошной линией. В результате аппроксимации определены численные значения и температурная зависимость эффективного пьезоэлектрического коэффициента  $e^*$  и эффективного коэффициента электрострикции  $f^*$  (рис. 2). На рис. 2 видно их значительное увеличение по абсолютной величине при понижении температуры от 105.5 до 102.3 К. Кроме того, при уменьшении температуры от 102.4 до 102.3 К происходит существенная линейризация зависимости относительного изменения скорости от электрического поля, что привело к дальнейшему увеличению эффективного коэффициента  $e^*$  и существенному

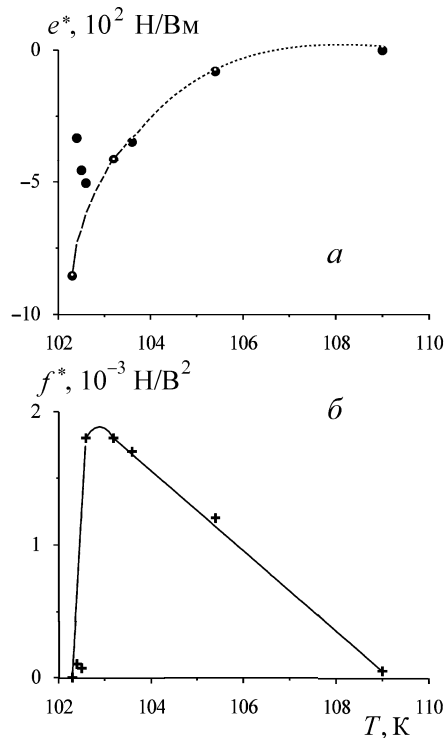


Рис. 2. Температурная зависимость эффективного пьезоэлектрического коэффициента  $e^*$  (а) и эффективного электрострикционного коэффициента  $f^*$  (б)

уменьшению относительного вклада в изменения скорости акустических волн эффективного коэффициента электрострикции  $f^*$ . При этом значения эффективных коэффициентов  $e^*$  в титанате стронция в исследованной области температур существенно превышают значения аналогичных коэффициентов в таких пьезоэлектрических кристаллах, например, как кварц и ниобат лития. Это указывает на то, что в области температур 102.3–102.5 К в исследованном образце титаната стронция присутствует пьезоэлектрический эффект и кристаллическая решетка не обладает центром симметрии.

Следует отметить, что нами не наблюдались гистерезисные и релаксационные явления, исследованные в работе [18] при возбуждении с поверхности продольной АВ в кристаллах титаната стронция. Отмеченные эффекты авторы объясняют образованием барьера Шоттки на границе диэлектрика с металлическим электродом и возникновением больших значений напряженности электрического поля в приповерхностном слое в несколько микрон. Очевидно, что в случае возбуждения звука с поверхности слой, прилегающий к контакту металл-диэлектрик, должен играть значительную роль. В нашем случае приповерхностные эффекты не должны оказывать существенного влияния на распределение электрического поля в объеме исследуемого образца. Оценки, проведенные в [19] показывают, что отмеченные выше явления при самых неблагоприятных ситуациях не могут привести к ошибкам измерений, превышающим (3–5)%.

При анализе причин, способных привести к появлению линейного вклада в полевую зависимость

электроакустических коэффициентов, наиболее вероятным представляется пьезоэлектрический механизм, возникающий при нарушении симметрии кристаллической решетки. Вблизи фазового перехода кристаллическая решетка неустойчива, и имеющиеся в ней дефекты, образовавшиеся при выращивании и обработке кристалла, приводят к нарушению кубической симметрии. Отклонение от кубической симметрии выше температуры фазового перехода в титанате стронция наблюдалось также в высокоточном эксперименте по исследованию теплового расширения методом емкостной дилатометрии [20]. Разность относительной термоупругой деформации вдоль осей [100] и [010], обнаруженная в [20], составляла  $10^{-5}$  вблизи перехода и сохранялась до 120 К (погрешность эксперимента составляла  $10^{-6}$ ).

При приближении к температуре фазового перехода влияние дефектов на величину физических параметров становится более существенным, что и приводит к значительному росту уже существующей небольшой пьезоэлектрической добавки.

Таким образом, исследование электроакустического эффекта в титанате стронция в области структурного фазового перехода позволило обнаружить появление пьезоэлектрического эффекта, которое связано с нарушением кубической симметрии кристалла, вызванным, по мнению авторов, имеющимися в кристалле дефектами.

Работа выполнена в Центре коллективного пользования по нелинейной акустической диагностике и неразрушающему контролю физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова при финансовой поддержке грантом Президента Российской Федерации (НШ-1575.003.2) и РФФИ (грант 02-02-16186).

#### Литература

1. Смоленский Г.А., Боков В.А., Исупов В.А. и др. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики. Л., 1971.
2. Tamura K., Yoshida Y., Sudoh K. et al. // Physica C. 2001. **357-60**. Pt. 2. P. 1386.
3. Hehlen B., Perou A.-L., Courtens E., Vacher R. // Phys. Rev. Lett. 1995. **75**, No. 2. P. 2416.
4. Landolt-Bornstein. Numerical Data and Functional Relationship in Science and Technology. New Series, Group III, vol. 28a. Berlin; Heidelberg, 1990.
5. Мэзон У., Тэрстон Р. Физическая акустика. Т. VI. М., 1973.
6. Shirane G. Rev. Mod. Phys. 1974. **46**, No. 3. P. 437.
7. Heidemann A., Wettengel H. // Z. f. Phys. 1973. **258**, No. 5. P. 429.
8. Landolt-Bornstein. Numerical Data and Functional Relationship in Science and Technology. New Series, Group III, vol. 16a. Berlin; Heidelberg, 1981.
9. Lytle F.W. // J. Appl. Phys. 1964. **35**, No. 7. P. 2212.
10. Rupprecht G., Winter W.H. // Phys. Rev. 1967. **155**, No. 3. P. 1019.
11. Muller K.A., Berlinger W. // Phys. Rev. Lett. 1975. **35**, No. 22. P. 1547.

12. *Nelms R.J., Hatton P.E., Vass H.* // Phys. Rev. Lett. 1988. **60**, No. 21. P. 2172.
13. *Willemsen H.W., Armstrong R.A., Meinske P.P.* // Phys. Rev. 1976. **B14**, No. 8. P. 3644.
14. *Плакида Н.М., Насруллоев Х.* // Кристаллография. 1985. **30**, № 6. С. 1183.
15. *Golding B.* // Phys. Rev. Lett. 1970. **25**, No. 20. P. 1439.
16. *Коробов А.И., Бражкин Ю.А.* // ФТТ. 1996. **38**, № 1. С. 63.
17. *Пекар С.И., Демиденко А.А., Здебский А.П. и др.* // ДАН СССР. 1976. **230**, № 5. С. 1089.
18. *Юшин Н.К., Сотников А.В.* // ФТТ. 1980. **22**, № 10. С. 2772.
19. *Бражкин Ю.А., Коробов А.И., Лямов В.Е.* // ФТТ. 1981. **23**, № 5. С. 1545.
20. *Mao Lui, Finlaison T.R., Smith T.F.* // Phys. Rev. 1997. **B55**, № 6. P. 3480.

Поступила в редакцию  
23.04.03

УДК 534.212+534.232

## ВЛИЯНИЕ ТОЛЩИНЫ СУБМИКРОННОЙ МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ ПЛЕНКИ НА ЭФФЕКТИВНОСТЬ ТЕРМООПТИЧЕСКОЙ ГЕНЕРАЦИИ УЛЬТРАЗВУКА В СИСТЕМЕ ПОДЛОЖКА–ПЛЕНКА–ЖИДКОСТЬ

А. А. Карабутов, В. В. Кожушко, И. М. Пеливанов, Н. Б. Подымова

(Международный учебно-научный лазерный центр)

E-mail: ivan@sasha.phys.msu.su

Рассматривается прямая задача оптоакустики для системы, в которой напыленная на кварцевую подложку металлическая пленка контактирует с иммерсионной жидкостью. Исследуется влияние толщины пленки на эффективность опτικο-акустического преобразования. В эксперименте использованы пленки хрома различной толщины и две иммерсионные жидкости: ацетон и этанол. Результаты измерений и теоретического моделирования позволяют сделать вывод о возможности определения толщины субмикронных металлических покрытий и исследования их теплофизических параметров по передаточной функции ОА преобразования.

Опτικο-акустические (ОА) методы в настоящее время находят широкое применение в задачах неинвазивной диагностики неоднородных сред и медицине [1–5]. В отсутствие нелинейных эффектов [6–8], влияния характеристик возбуждающего лазерного излучения и свойств поглощающей среды на временной профиль ОА импульса могут быть разделены [8, 9]. Передаточная функция ОА преобразования  $K(f)$  показывает эффективность возбуждения звуковых колебаний различной частоты при воздействии на среду импульсного лазерного излучения и определяется как отношение фурье-спектров импульса давления  $\tilde{p}(f)$  и временной огибающей интенсивности лазерного импульса  $\tilde{L}(f)$ :

$$K(f) = \tilde{p}(f) / \tilde{L}(f). \quad (1)$$

Особый интерес представляет решение обратной задачи оптоакустики [10] — нахождение теплофизических и физико-механических параметров поглощающей среды по временной форме давления широкополосного ОА импульса или по передаточной функции ОА преобразования. Данная задача не всегда имеет аналитическое решение, однако современное развитие вычислительной техники позволяет в некоторых случаях свести ее к итерационной процедуре решения прямой задачи.

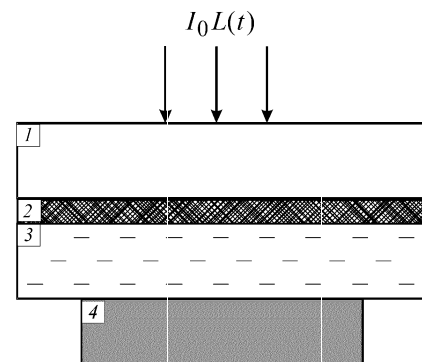


Рис. 1. ОА преобразование в системе кварцевая подложка (1) — пленка хрома (2) — иммерсионная жидкость (3). Широкополосный акустический пьезоприемник (4) расположен со стороны жидкости

Настоящая работа направлена на решение прямой задачи оптоакустики — нахождения передаточной функции ОА преобразования — для системы, в которой напыленная на прозрачную для лазерного излучения кварцевую подложку пленка контактирует с иммерсионной жидкостью (рис. 1). Цель работы — установление закономерностей влияния толщины покрытия на передаточную функцию ОА преобразования.

Рассмотрим структуру, изображенную на рис. 1. Пусть лазерный импульс длительностью  $\tau_L$  с вре-