

Новые возможности для анализа деформаций колеблющихся кристаллов с помощью рентгеновской визуализации кривой качания

Я. А. Элиович¹⁾, И. И. Петров, В. А. Коржов, В. И. Аккуратов, Ю. В. Писаревский

Курчатовский комплекс кристаллографии и фотоники, научно-исследовательский центр “Курчатовский институт”,
119333 Москва, Россия

Поступила в редакцию 9 июля 2024 г.

После переработки 24 июля 2024 г.

Принята к публикации 24 июля 2024 г.

В работе предложен новый подход к проведению исследований динамики деформаций структуры кристаллов в условиях внешних воздействий, основанный на методе рентгеновской визуализации кривой качания. С помощью данного подхода были проведены исследования пространственного распределения, типа и величины деформаций кристаллической структуры перспективного для промышленного применения кристалла лангасита в условиях динамической ультразвуковой нагрузки (возбуждения стоячей ультразвуковой волны).

DOI: 10.31857/S0370274X24090104, EDN: HAYRYA

1. Введение. Метод рентгеновской визуализации кривой качания – один из наиболее современных и совершенных методов исследования упорядоченных объектов с помощью рентгеновского излучения, который обладает уникальными возможностями по определению локальных изменений в дефектной структуре образца и высоким пространственным разрешением. В настоящее время этот метод активно развивается и широко применяется как в лабораторных условиях, так и на синхротронных источниках для решения передовых научных задач [1, 2]. Например, в работе [3] была реализована особая техника визуализации кривой качания, которая позволила получать трехмерные изображения дефектов и измерять трехмерные искажения в объеме кристалла.

Новой и актуальной задачей является изучение возможностей этого метода для исследования динамических процессов, возникающих в кристаллах в условиях внешних воздействий, а также его интеграция в комплекс исследовательских методик с временным разрешением. В данной работе приведены результаты исследования распределения деформаций методом визуализации кривой качания в кристалле лангасита ($\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ – LGS), при низкочастотном ультразвуковом воздействии (возбуждении стоячей ультразвуковой волны, далее – УЗ).

Кристаллы семейства лангаситов, появившиеся относительно недавно, сегодня являются объектом

множества исследований и активно применяются в акустоэлектронике и пьезотехнике [4, 5]. Интерес к данному типу кристаллов обусловлен, прежде всего, превосходными пьезоэлектрическими свойствами [6–8]. Кристаллы семейства лангасита выгодно отличаются от традиционно используемых кристаллов кварца более высоким коэффициентом электромеханической связи (КЭМС), а также отсутствием фазовых переходов ниже температуры плавления.

Упомянутые преимущества делают кристаллы семейства лангасита перспективным материалом для изготовления резонаторов, в том числе управляемых поверхностными волнами [9], и фильтров с высокой температурной стабильностью [10]. Данные монокристаллы также могут быть использованы для создания эффективных адаптивных элементов рентгеновской оптики (АЭРО), основанных на стоячих ультразвуковых волнах. Они могут быть использованы для контролируемого изменения параметра решетки и, тем самым, управления параметрами дифрагирующего на таком элементе рентгеновского пучка [11, 12]. Однако применение кристаллов семейства лангасита как материала для изготовления тех или иных устройств требует, помимо прочего, изучения деформационного поведения кристаллов в условиях, близких к реальным условиям эксплуатации готовых приборов на их основе. Ранее подобные исследования проводились при условии возбуждения в кристаллах лангасита поверхностных волн [13], однако не проводились исследования при возбуждении стоячих акустических волн.

¹⁾e-mail: yan.eliovich@gmail.com

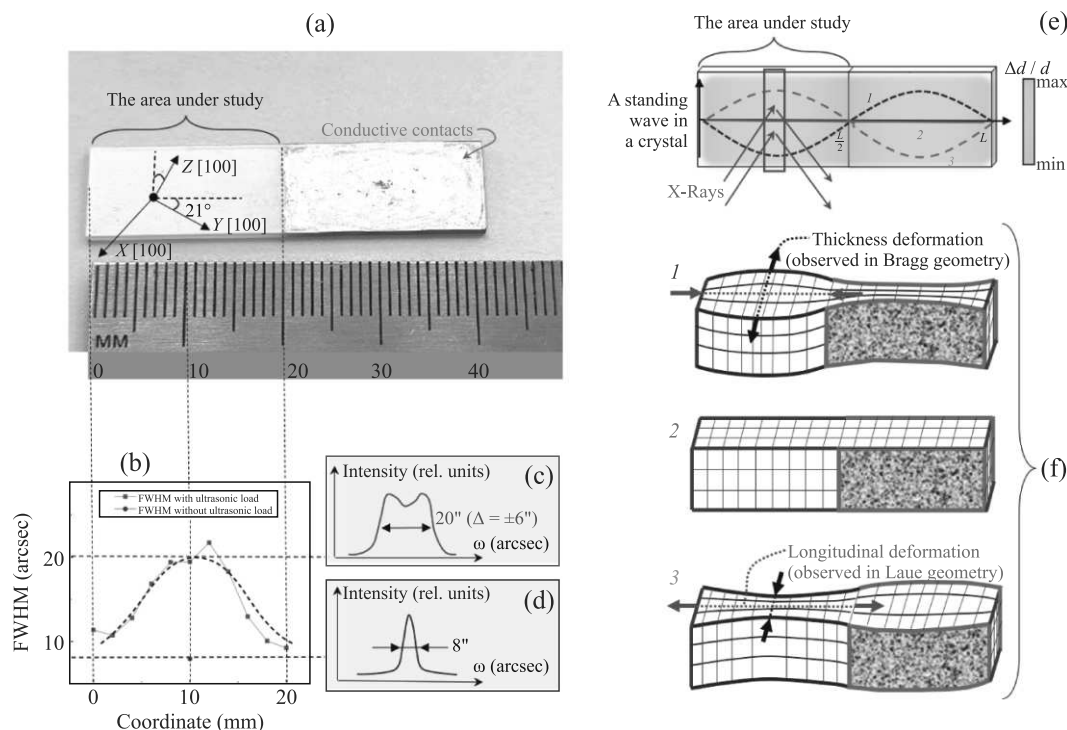


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Фото образца LGS с токопроводящими контактами, нанесенными на половины боковых поверхностей, с изображением кристаллографических направлений в кристалле LGS X-среза, повернутом от осей YZ на 21° против часовой стрелки вокруг X оси. (б) – График зависимости полуширин КДО, измеренных вдоль боковой поверхности кристалла в условиях вибрационной нагрузки и в отсутствии внешних воздействий, слева от графика приведен схематичный вид КДО, полученных в центре исследуемой области при УЗ воздействии (с) и без него (d). (е) – Схематичное изображение распределения деформаций в кристалле при установлении стоячей волны продольных колебаний. (f) – Схематичное изображение возникающих при УЗ воздействии деформаций растяжения-сжатия по длине и, как следствие, по толщине образца.

2. Описание образца и методик проведения экспериментов.

Описание образца. Исследуемый кристаллический образец представлял собой пластину из монокристалла LGS размерами $42 \times 10 \times 1 \text{ мм}^3$ (рис. 1а). В работе использовался кристалл X-среза, повернутый от осей YZ на 21° против часовой стрелки вокруг X оси. Такая ориентация позволяла получить чистую моду продольных колебаний в плоскости YZ . Образец закреплялся на многокружном гониометре ТРС в специализированном рентгеноакустическом держателе. Для возбуждения низкочастотных ультразвуковых колебаний (частота 96.5 кГц – резонансная частота продольной моды колебаний) на половины боковых поверхностей образца были нанесены токопроводящие покрытия, через которые с помощью держателя на кристалл подавался низкочастотный ультразвуковой сигнал с лабораторного генератора сигналов.

Метод двухкристальной дифрактометрии. Первые исследования образца проводились методом

двухкристальной дифрактометрии. В эксперименте использовался кремниевый монохроматор Si(400). Образец юстировался под углом Брэгга 20.3° для атомных плоскостей $[44\bar{8}0]$ в геометрии Брэгга. После настройки системы подачи и контроля ультразвуковых колебаний были проведены предварительные эксперименты, направленные на определение интегрального распределения деформаций вдоль поверхности образца при низкочастотном ультразвуке (напряжение сигнала 26.5 В , частота $f_{\text{res}} = 96.5 \text{ кГц}$). Для этого проводилась регистрация кривых дифракционного отражения (КДО) вдоль поверхности образца при ультразвуковом воздействии. На рисунке 1b представлены значения полуширины КДО в свободной от электродов области кристалла с шагом 2 мм . Точка с абсциссой 0 мм соответствует левому свободному краю кристалла, точка 20 мм – центру кристалла. Как видно из результатов на рис. 1b, в процессе приложения вибрационной нагрузки по мере приближения к центру половины кристалла КДО уширяется, что хорошо

согласуется с теоретическими моделями и проведенными ранее измерениями для кристалла кварца [14–16]. Для наглядности, в точке наибольшей деформации, соответствующей координате 10 мм, отдельно схематично приведены кривые качания без ультразвука и при его возбуждении (рис. 1с–d). Видно, что при подаче УЗ полуширина КДО в этой точке увеличилась в 2.5 раза. Также при ультразвуке наблюдается характерное двугорбое уширение кривой качания, указывающее на наличие синусоидальных колебаний межплоскостного расстояния. Представленные данные свидетельствуют о наличии градиента деформаций на поверхности кристалла LGS вдоль его длины, распределение которых имеет гармонический вид с максимумами в центрах половин кристалла (рис. 1е, f).

Метод визуализации кривой качания. Описанный метод двухкристальной дифрактометрии, до сих пор широко применяемый, в том числе для изучения промышленно важных кристаллических материалов, не позволяет изучать деформации с высоким пространственным разрешением. Для изучения пространственного распределения деформаций вдоль всей поверхности кристалла, в том числе по ширине, лучше подходит метод рентгеновской визуализации кривой качания, являющийся дальнейшим развитием метода рентгеновской топографии и дающий возможность с высокой эффективностью и локальностью оценить, где именно происходит изменение структуры за счет высокого пространственного разрешения [2].

В рамках данной работы метод визуализации кривой качания также использовался для изучения исследуемого образца в условиях ультразвуковой нагрузки. В качестве монохроматора использовался асимметрично вырезанный кристалл кремния с отражением 440, с помощью которого отрезалась $\text{MoK}_{\alpha 2}$ линия и уширялось поперечное сечение рентгеновского пучка. Регистрация отдельных топограмм осуществлялась с помощью пиксельного 2D детектора AdvaPIX TPX3 с CdTe матрицей, расположенного на расстоянии 20 см от образца. Детектор имеет матрицу 256×256 пикселей, размер одного пикселя 55 мкм, соответственно “окно” детектора составляет $14 \times 14 \text{ мм}^2$.

Применение двумерного детектора позволяет записывать серию топографических изображений при изменении углового положения образца в процессе ω -сканирования, тем самым позволяя регистрировать КДО исследуемого кристалла в каждом отдельном пикселе детектора, соответствующем определенной области кристалла (рис. 2). Такая методика называ-

ется визуализацией кривой дифракционного отражения (качания) и сочетает в себе преимущества рентгеновской дифрактометрии и рентгеновской топографии, позволяя характеризовать качество решетки, а также с высокой локальностью определять распределение дефектов в кристалле [17]. На основании совокупности всех пикселей серии можно составить визуальные карты различных параметров КДО (англ. rocking curve imaging maps или сокращенно RCI maps), например, ширины кривой качания на половине высоты (FWHM). Таким образом, при исследовании образца в геометрии Брэгга с помощью представленного 2D детектора методика позволяет оценить реальную структуру поверхности кристалла с разрешением в 55 мкм.

В ходе экспериментов с образцом LGS исследовалась свободная от электродов половина кристалла. Топографические изображения образца регистрировались при отсутствии ультразвукового воздействия и при низкочастотном ультразвуке (напряжение сигнала 13.3 В, частота $f_{\text{res}} = 96.5 \text{ кГц}$). Изображения регистрировались при разных угловых отстройках образца вокруг точного брэгговского положения (ω -сканирование), затем полученные кадры группировались в серию. Серия разбивалась по пикселям для формирования RCI карты полуширин КДО.

На рисунке 3 приведены карты полуширин для разных условий. Без нагрузки (рис. 3а) полуширина по всей поверхности меняется слабо, что свидетельствует об относительной однородности структуры образца. Стоит также отметить наличие напряжений в виде наклонных полос в ненагруженном состоянии, они связаны с процессом выращивания кристалла и называются полосами роста. Их наклон обусловлен наклоном среза пластинки в плоскости отражения. При воздействии ультразвука деформации от данных полос становятся незначительными, при этом характер распределения деформаций сильно меняется (рис. 3б). На поверхности кристалла становятся хорошо видны зоны с разными значениями деформаций. Вдоль оси, смещенной относительно направления Y на 21° устанавливается стоячая волна растяжения–сжатия. В центре исследуемой области кристалла наблюдается увеличение полуширин КДО, вызванное увеличением амплитуды деформаций. Несимметричный вид получаемой картины, скорее всего, обусловлен поджимом крепления кристаллодержателя, фиксирующего кристалл, что вносит вклад в “раскачку” кристалла и приводит к изменению деформаций в области контакта.

При попиксельном сравнении полученных RCI карт друг с другом по величине уширения КДО

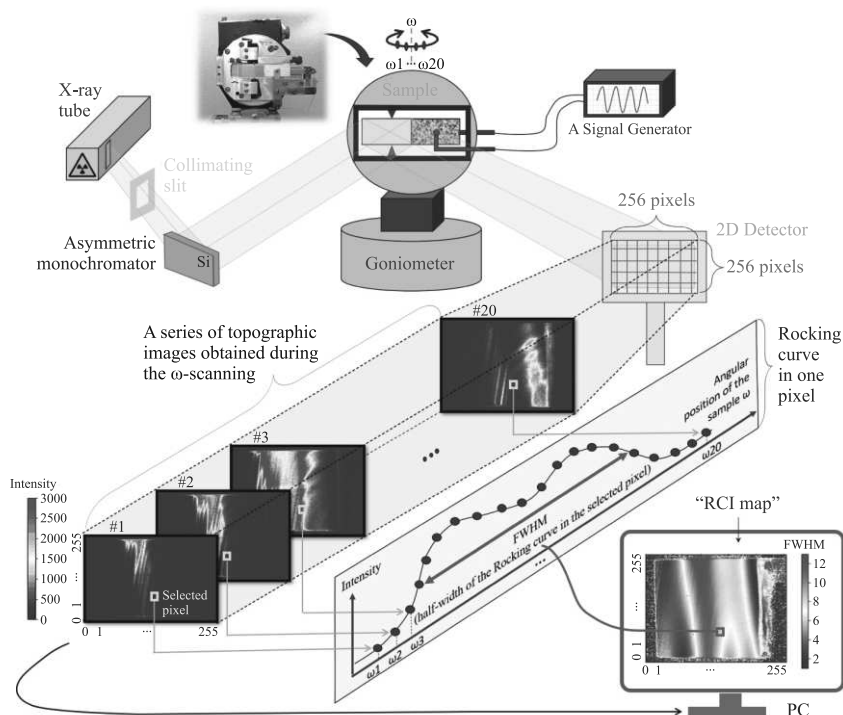


Рис. 2. (Цветной онлайн) Экспериментальная схема, реализованная на базе лабораторного дифрактометра ТРС, используемая для реализации методики визуализации КДО образца, исследуемого в условиях вибрационной нагрузки. Схема оснащена двумерным детектором, записывающим серию топографических изображений при изменении углового положения образца в процессе ω -сканирования, что позволяет построить RCI карты всей исследуемой поверхности кристалла за счет попиксельного анализа серии полученных топограмм

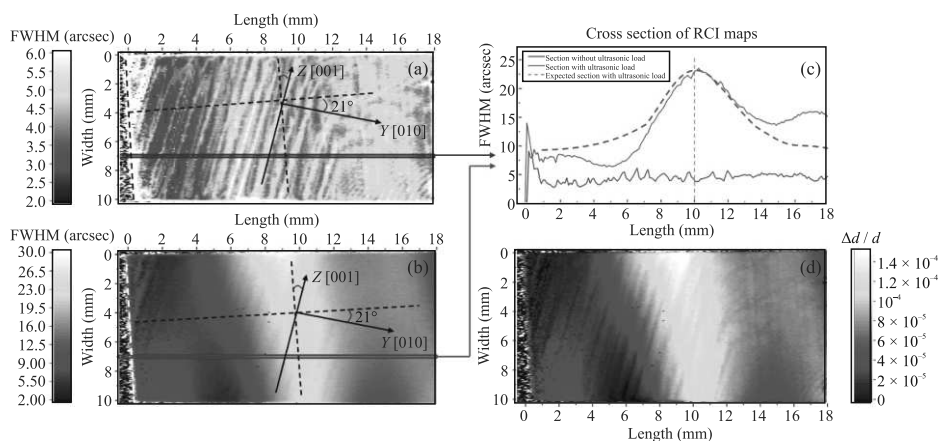


Рис. 3. (Цветной онлайн) RCI-карты полуширин КДО, полученные для исследуемой поверхности кристалла LGS без внешнего воздействия (а) и в условиях ультразвуковой динамической нагрузки (б) с частотой $\nu = 96.5$ кГц и амплитудой подаваемого с генератора сигнала 13.3 В. (с) – Горизонтальные сечения полученных карт, построенные для фиксированной координаты по ширине образца 7 мм. (д) – Карта относительных деформаций, рассчитанная по величине уширения КДО и смещению пика

и смещению пика при ультразвуковом воздействии для каждого пикселя была рассчитана величина относительной деформации $\frac{\Delta d}{d}$. Полученные результаты представлены на рис. 3д. По данным результатам

видно, что в центре исследуемой области кристалла LGS наблюдается область наибольшей деформации ($\frac{\Delta d}{d} = 1.4 \cdot 10^{-4}$), соответствующая пучности стоячей волны растяжения–сжатия.

3. Заключение. В данной работе методом двух-кристальной рентгеновской дифрактометрии установлено, что в условиях вибрационной нагрузки в кристалле LGS X-среза возникают неоднородные деформации на поверхности образца (глубина экстинкции около 7 микрон) вдоль его длины, подчиняющиеся гармоническому закону. Данные деформации обусловлены периодическим изменением межплоскостного расстояния d , вызванным продольной акустической стоячей волной. Методом визуализации кривой качания было установлено пространственное распределение возникающих деформаций. По величине уширения КДО при ультразвуковом воздействии рассчитана относительная деформация по толщине $\frac{\Delta d}{d}$ и получена двумерная карта толщинных деформаций образца с разрешением 55 мкм. Относительная деформация по толщине образца в области наибольшей амплитуды стоячей волны составила $\frac{\Delta d}{d} = 1.4 \cdot 10^{-4}$.

Таким образом, с помощью предложенного подхода на основе рентгеновской визуализации кривой качания удалось определить природу и характер возникающих деформаций структуры кристаллов LGS в условиях ультразвуковых воздействий, их распределение вдоль всей поверхности образца, а также произвести численную оценку относительной деформации. Показано, что предложенный подход является перспективным инструментом для разносторонней оценки эволюции деформаций в процессе исследования кристаллов в условиях внешних воздействий и их характеристики, что открывает новые возможности для исследования перспективных кристаллических материалов в условиях внешних воздействий. С помощью предложенного подхода впервые проведены исследования кристалла-резонатора продольных колебаний, показано, что он позволяет эффективно оценивать распределение деформаций в резонаторах и оценивать их функциональные характеристики – в частности, относительную деформацию решетки, определяющую рабочий диапазон перестройки готового резонатора.

Также в настоящее время рассматриваются возможности создания комплекса топографических рентгеновских методик на основе сочетания метода визуализации кривой качания и времяразрешающих методик на основе адаптивных элементов рентгеновской оптики, активно разрабатываемых коллективом авторов данной работы, что позволит, в том числе, значительно ускорить проведение исследований с помощью предложенного подхода.

Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего об-

разования в рамках проведения исследований по Государственному заданию научно-исследовательского центра “Курчатовский институт” в части изготовления и тестирования образцов, а также в рамках Соглашения с Минобрнауки РФ от “1” января 2024 г. # 075-15-2024-637 в части проведения рентгеновских измерений.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. A. Sakdinawat and D. Attwood, *Nat. Photonics* **12**, 840 (2010).
2. В. В. Лидер, *Физика твердого тела* **63**, 165 (2021).
3. A. Philip, J. Meyssonier, R. T. Kluender, and J. Baruchel, *J. Appl. Crystallogr.* **46**, 842 (2013).
4. И. М. Сильвестрова, Ю. В. Писаревский, П. А. Сеньющенков, А. И. Крупный, *Физика твердого тела* **28**, 2875 (1986).
5. B. V. Mill and Yu. V. Pisarevsky, *Proceedings of the 2000 IEEE/EIA International Frequency Control Symposium and Exhibition* **00CH37052**, 133 (2000).
6. И. А. Андреев, М. Ф. Дубовик, *Письма в ЖТФ* **10**, 487 (1984).
7. O. Le Traon, S. Masson, C. Chartier, and D. Janiaud, *Solid State Sciences* **12**, 318 (2010).
8. T. Iwataki, H. Ohsato, K. Tanaka, H. Morikoshi, J. Sato, and K. Kawasaki, *J. Eur. Ceram. Soc.* **21**, 1409 (2001).
9. D. V. Roshchupkin, H. D. Roshchupkina, and D. V. Irzhak, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **52**, 2081 (2005).
10. S. Sakharov, S. Kondratiev, A. Zabelin, N. Naumenko, A. Azarov, S. Zhgoon, and A. Shvetsov, *Theoretical and experimental investigation of langasite as material for wireless high temperature SAW sensors in 2010 IEEE International Ultrasonics Symposium, IEEE, San Diego, CA, USA* (2010), p. 535.
11. A. R. Mkrtchyan, A. H. Mkrtchyan, V. R. Kocharyan, A. E. Movsisyan, S. B. Dabagov, and A. P. Potylicyn, *Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences)* **48**, 141 (2013).
12. А. Е. Благоев, Ю. В. Писаревский, П. А. Просеков, А. В. Таргонский, Я. А. Элиович, А. И. Проценко, М. В. Ковальчук, *Кристаллография* **62**, 870 (2017).
13. D. V. Roshchupkin, D. V. Irzhak, R. Tucoulou, O. A. Buzanov, *J. Appl. Phys.* **94**, 6692 (2003).
14. А. Е. Благоев, М. В. Ковальчук, В. Г. Кон, В. В. Лидер, Ю. В. Писаревский, *ЖЭТФ* **128**, 893 (2005).
15. А. Е. Благоев, А. Н. Даринский, М. В. Ковальчук, Ю. В. Писаревский, П. А. Просеков, А. В. Таргонский, *Акустический журнал* **59**, 561 (2013).
16. Я. А. Элиович, А. Е. Благоев, В. Р. Кочарян, А. С. Гоголев, А. В. Таргонский, А. Е. Мовсисян, В. А. Коржов, А. Г. Мкртчян, М. В. Ковальчук, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 170 (2022).
17. D. Lubbert, T. Baumbach, J. Hartwig, E. Boller, and E. Pernot, *Nucl. Instr. Meth. B* **160**, 521 (2000).