

铁电薄片的损耗角正切

冯锡淇* 任琮欣** 邵黎熹*** 张雁行*

摘要——本文研究粗磨、细磨、机械抛光和离子研磨四种不同的表面处理方法对 LiNbO_3 和 LiTaO_3 铁电晶体薄片损耗角正切的影响,对所得到的结果进行了简略的讨论。实验发现,对离子研磨样品进行中温热处理可以有效地降低薄片的损耗角正切。

在铁电体的多种技术应用中,铁电体常被加工成 $100\ \mu\text{m}$ 甚至 $10\ \mu\text{m}$ 以下的薄片,因而对铁电薄片进行研究是必要的。Lane^[1] 曾经研究了不同的表面处理对薄陶瓷元件介电、热释电及压电性能的影响,我们则以 LiNbO_3 (简称 LN) 和 LiTaO_3 (简称 LT) 铁电晶体为对象,研究了不同表面处理对铁电薄片损耗角正切的影响及其变化规律。

一、样品制备

本文使用一致熔化组分的 LN、LT 单畴晶体,分别切割成与极化轴垂直的、大小为 $2.9 \times 2.9\ \text{mm}^2$ 的小方片,采用下列四种方式进行表面处理:(1) M_{25} 碳化硅砂粗磨;(2) M_{10} 碳化硅砂细磨;(3) M_1 钻石膏机械抛光(表面平整度 $\leq 300\ \text{\AA}$,表面呈现轻微划痕);(4) M_1 钻石膏抛光后进行离子研磨(氩离子法向入射能量为 $600\ \text{eV}$,两面各刻蚀二十分钟,束流 $1\ \text{mA}/\text{cm}^2$ 。表面平整度 $\leq 300\ \text{\AA}$,表面出现与化学浸蚀相似的蚀坑)。

上述各种薄片最终厚度均为 $50\ \mu\text{m}$ 左右,电极直径为 $2.4\ \text{mm}$,上电极为铬层,方块电阻为 $360\ \Omega$,下电极为铬/金双层电极。用导电胶将晶片以桥式悬空结构安装于高绝缘、低损耗的氧化铝陶瓷衬底上,接出引线(图 1)。整个制备过程中温度不超过 120°C 。

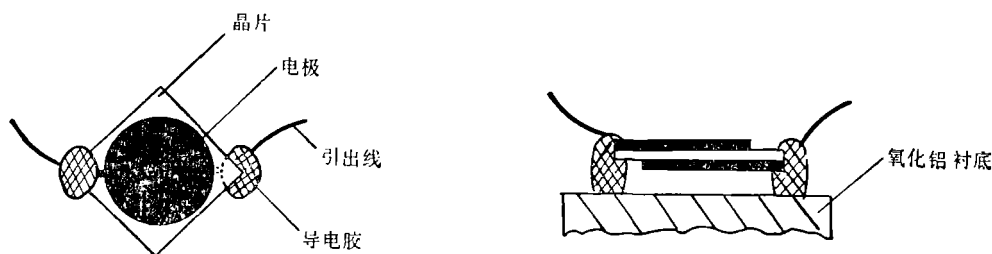


图 1 测试用芯片

本文 1981 年 7 月 30 日收到。

* 中国科学院上海硅酸盐研究所; ** 中国科学院上海冶金研究所; *** 上海无线电六厂。

二、实验结果

为了把环境的影响减至最小,介电测量在真空金属屏蔽盒中完成。使用 QS-16 型精密电容电桥进行测量,测试频率为 400 Hz,场强约为 6000 V/cm,电容和损耗角正切的测量精度分别 $\pm 0.01\%$ 和 $\pm 2\%$ 。结果归纳如下。

1. 不同表面处理方式对损耗角正切的影响

实验中观察到表面处理对铁电薄片的损耗角正切有明显影响,结果列于表 1。表中所列损耗角正切为各组典型样品的平均值。可以看出,无论是对 LN 或 LT,表面光洁度愈高,损耗角正切值愈低。值得注意的是机械抛光与离子研磨所得结果无明显区别。

表 1 表面处理对 LN、LT 晶体损耗角正切的影响(29°C、400 Hz)

材 料	表面处理方式	$\tan \delta$
LiNbO ₃	粗 磨	2.3×10^{-3}
	细 磨	1.3×10^{-3}
	机 械 抛 光	5.4×10^{-4}
	离 子 研 磨	3.7×10^{-4}
LiTaO ₃	粗 磨	2.0×10^{-3}
	细 磨	1.4×10^{-3}
	机 械 抛 光	3.5×10^{-4}
	离 子 研 磨	5.0×10^{-4}

2. 离子研磨晶片的后处理对损耗角正切的影响

由另一只 LN 单畴晶体中切出一批垂直于 C 轴的晶片(其面积为 $2.5 \times 2.5 \text{ mm}^2$),进行离子研磨,条件与第一只晶体 LN1 相同,最终厚度约 $45 \mu\text{m}$ 。取出部分样品在 620°C (空气中)以及 950°C (通氧)进行热处理,然后制备测试电极,进行测试。各组样品的结果(平均值)如表 2 所示。可以看到,经过中温热处理的样品,损耗角正切较低。

表 2 热处理对离子研磨样品损耗角正切的影响(29°C, 400 Hz)

表面处理方式	离 子 研 磨	离子研磨,空气中热处理 (620°C , 16 小时)	离子研磨,通氧热处理 (950°C , 8 小时)
$\tan \delta$	1.6×10^{-3}	7.0×10^{-4}	2.9×10^{-3}

三、讨 论

铁电薄片损耗角正切的测量值可由下式表示:

$$\tan \delta = \tan \delta_T + \tan \delta_R + \tan \delta_b, \quad (1)$$

其中 $\tan \delta_T$ 是由热电耦合损耗引起的损耗角正切^[2],

$$\tan \delta_T = \frac{k_T}{\omega \cdot C_v} \cdot K, \quad (2)$$

这里 ω 为测试频率, C_e 为电极覆盖区热容, k_T 为被测材料的热电耦合系数, K 为薄片对环境总热导。显然, 当 ω 一定时, $\tan \delta_T$ 主要取决于薄片的安装方式, 这可由横向热扩散理论加以估算。 $\tan \delta_R$ 为串联电阻损耗:

$$\tan \delta_R = \omega \cdot C \cdot R_s, \quad (3)$$

其中 R_s 为芯片本身的串联电阻, C 为器件电容。 $\tan \delta_b$ 为薄片的本体损耗。在薄片制备过程中产生的表面层, 它们的性质不同于体材料, 加工层厚度随加工方式而异。设薄片厚度为 t , 上下电极附近各有厚度为 t_s 的表面层(见图 2)。根据 Kingery^[3] 的分层电介质模型, 并忽略表面层和本体层介电常数的差异, 可以导出:

$$\tan \delta_b = \frac{1}{1 - \frac{2t_s}{t} \left(1 - \frac{\tan \delta_i}{\tan \delta_s}\right)} \tan \delta_i \quad (4)$$

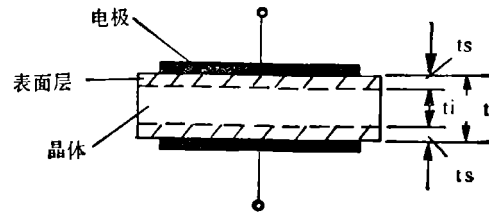


图 2 分层电介质

其中 $\tan \delta_s$ 和 $\tan \delta_i$ 分别为表面层和本体区的损耗角正切, 从式 (1)、(2)、(3) 可以看出, 当铁电体以薄片形式出现时, 表现的损耗角正切不再代表材料的本体值, 而是一个与制片工艺、电极、薄片安装方式等外来因素有关的特异量。对同一种材料的样品进行讨论时, 由于薄片安装方式和测试频率相同, 根据式 (2), 可以认为, $\tan \delta_T$ 相同, 因此在本文中, 实质问题是讨论表面处理对 $\tan \delta_b$ 和 $\tan \delta_R$ 的影响。

粗磨、细磨和机械抛光样品的比较 这里, 表面层是由磨料粒子磨削所造成的晶格畸变区, 其结构类似多晶体。在加工过程中, 表面层诱发大量高密度针状反畴^[4], 因而在性能上接近多畴多晶体, 具有较高的损耗角正切值。而表面层的深度与磨料粒子直径、晶体硬度、压力等因素有关。一般地说, 对同一晶体, 与磨料粒子的直径成正比。由式 (4) 可知, 表面光洁度愈高(即表面层厚度愈薄), 则损耗角正切愈小。

离子研磨样品的损耗角正切 众所周知, 离子研磨工艺是制备薄晶片的理想工艺。除使用方便, 清洁外, 还能除去由机械研磨造成的损伤, 这已为微畴密度的显著下降所证实^[5]。因此我们曾经期望离子研磨样品的损耗角正切将大大低于机械抛光样品。但实验表明, 实际情况并非如此。因而有必要对 LN 的离子研磨过程作进一步的分析。

离子研磨是通过低能离子与靶材料原子的弹性碰撞使表层原子受到溅射。其中部分原子逸出晶体, 余留原子也产生不同程度的位移, 其结构类似非晶态。根据离子研磨理论作出的估计, LN 晶体的非晶层厚度约为几百埃。根据式 (4), 如此薄的表面层似乎不会对损耗角正切有可观的影响。可见, 由离子研磨引起的 LN 晶体表面层具有更复杂的性质。Couths 等^[6] 在用 X 射线和紫外光电子能谱研究了经氩离子轰击的 LN 单晶表面的电子性质后发现, LN 中的氧 O_{1s} 谱线 (530.3 eV) 强度大为减弱, 说明轰击后有大量氧缺位产生。溅射引起的非化学计量“损伤”层厚度估计为几微米, 远远大于 LN 晶体的非晶层厚度。我们认为, 这一“损伤”层可能是影响损耗角正切的重要原因, 因为我们的实验发现, 离子研磨后的 LN 晶片表面层的光吸收系数和导电率均明显增大, 而 LN 中氧缺位的行为相当于电导中心, 即使较低的浓度也会使晶体电导率明显增大。在 $LiTaO_3$ 和 $Ba_xSr_{1-x}Nb_2O_6$ 晶体中也有类似现象。

中温 (600°C) 热处理的影响 综上所述, 为进一步降低铁电薄片的损耗角正切, 去除表面损伤层是必须的。适度的化学腐蚀可以去除表面损伤层, 从而使损耗角正切减小。但这

种湿法工艺成品率很低,且难于控制。基于上述分析,对于离子研磨薄片,由于离子轰击而使表面层中的LN因缺氧而部份还原。显然,如果使氧原子通过表面向内扩散,重新填满氧缺位,将能消除这种损伤层。我们采用的办法是:在空气或氧气中进行中温(600°C)热处理使晶片复原,从而降低损耗角正切。这已在表2所列的结果中得到证实。

自从Stoskowski于1976年提出用离子研磨工艺制备热释电探测器以来^[8],人们曾寄予厚望,认为它是实现背景限制热释电探测器最理想的工具。但是一段时间来,使用离子研磨工艺制作的探测器的 D^* 低于预期值。原因是这些带有超薄灵敏元的器件,其损耗角正切远超过相应晶锭的值^[9]。我们认为这可能与本文讨论的氧缺位薄层的存在有关。我们希望,在用离子研磨工艺制备热释电器件时,在研磨以后配以相应的热处理后工序,可以期待器件的探测率会有适度的改善。顺便指出,当以离子研磨工艺制作LN或LT电光元件或超高频换能器件时,上述热处理后工序对于提高电光元件的表面抗光性和保持换能器的转换效率同样是有益的。

参 考 文 献

- [1] Lame R. & Brown, K. R. *Trans. & J. Brit. Ceram.*, **73**(1974), 3, 65.
- [2] Stoskowski, S. E. *Appl. Phys. Lett.*, **29**(1976), 393.
- [3] Kingery, W. D. *Introduction to Ceramics*, New York: J. Wiley & Sons, 1960, 719.
- [4] Omishi, N. *J. Appl. Phys.*, **46**(1975), 1063.
- [5] Venables, J. D. *Appl. Phys. Lett.*, **25**(1974), 254.
- [6] Courths R. et al., *Appl. Phys.*, **21**(1980), 345.
- [7] 大森裕等,日本物理学会第31回予稿集2,物性I, 24.
- [8] Stoskowski, S. E. *Infrared Phys.*, **16**(1976), 331.

LOSS TANGENT OF THIN FERROELECTRIC CRYSTAL ELEMENTS

FENG XIQI*, REN CONGXI**, SHAO LIXUN***, CHANG YENXING*

ABSTRACT

The effects of various surface treatments on the loss tangent of some thin ferroelectric elements of LiNbO_3 and LiTaO_3 single crystals have been investigated. The experimental results are briefly discussed. It has been found that the loss tangent of the thin ferroelectric elements can be effectively decreased by means of annealing at moderate temperature(600°C) for the ion-milled samples.

* Shanghai Institute of Ceramics, Academia Sinica;

** Shanghai Institute of Metallurgy, Academia Sinica;

*** The Sixth Radio Works of Shanghai.