

Атомно-силовая микроскопия поляризационных доменов в сегнетоэлектрических пленках

© А.В. Анкудинов, А.Н. Титков

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Alexander.Ankudinov@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 14 июля 2004 г.)

Методом контактной электростатической силовой микроскопии исследованы тонкие монокристаллические $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (001) и поликристаллические $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (111) сегнетоэлектрические пленки. Проведены измерения величины локального электромеханического отклика, которые позволили изучить распределение вектора поляризации в естественных, а также в направленно-созданных поляризационных нанодоменах в пленках. Выделены и проанализированы основные компоненты сигнала электромеханического отклика, возникающие при исследовании сегнетоэлектрических пленок: пьезоотклик и дополнительный емкостный вклад. На модельном и экспериментальном уровне продемонстрировано влияние жесткости контакта зонд–поверхность на емкостный вклад в сигнал электромеханического отклика. Показано, что для получения более точной информации о распределении вектора поляризации в сегнетоэлектрических пленках необходимо контролировать локальные изменения жесткости контакта зонд–поверхность.

Работа поддержана Министерством образования и науки в рамках контракта „Диагностические методы и оборудование для метрологии, анализа компонентов и микроструктур технологии микро- и нанoeлектроники“, а также Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 03-02-17635).

1. Введение

Исследования сегнетоэлектрических пленок методами атомно-силовой микроскопии (АСМ) играют важную роль в развитии практических применений сегнетоэлектриков [1–3]. За счет того, что радиус закругления острия зонда АСМ очень мал ($\sim 10\text{--}100\text{ nm}$), приложение к зонду совсем небольшого потенциала ($\sim 1\text{ V}$) позволяет получить в зазоре между зондом и сегнетоэлектрическим образцом высокую напряженность электрического поля ($E \sim 10^7\text{--}10^8\text{ V/m}$). Такие поля можно использовать как для зондирования локального поляризационного состояния, так и для переполяризации в пленке областей наноскопических размеров. Эти уникальные возможности АСМ позволяют, например, вести разработку систем сегнетоэлектрической памяти со сверхвысокой плотностью записи — сотни гигабит на квадратный сантиметр [4]. Наиболее информативным АСМ-методом диагностики и модификации доменной структуры сегнетоэлектрических пленок является контактная электростатическая силовая микроскопия (ЭСМ) [5,6], с помощью которой измеряется сигнал локального электромеханического отклика (ЭМО) образца. Все сегнетоэлектрические материалы являются пьезоэлектриками, а сигнал ЭМО (EMR — electromechanical response) оказывается чувствительным к величине локального обратного пьезоэффекта. В силу этого метод ЭСМ также часто упоминается под названием силовой микроскопии пьезоотклика (piezoresponse force microscopy — PFM [7]). При исследовании тонких сегнетоэлектрических пленок сигнал ЭМО чувствителен (с детальностью лучше 10 nm) к вариациям локального коэрцитивного поля [8,9] и пьезомодуля [5,10]. Однако измерения этих важных параметров ЭСМ-методом за-

метно затруднены из-за присутствия в сигнале ЭМО дополнительного емкостного вклада, напрямую не связанного с сегнетоэлектрическими свойствами образца.

В работе [11] было показано, что емкостный вклад пропорционален разности потенциалов между зондом АСМ и электродом, поддерживающим сегнетоэлектрическую пленку, и обратно пропорционален жесткости зонда, контактирующего с образцом. Изменения локальной кривизны рельефа при перемещении зонда по поверхности сильно влияют на величину такой жесткости. Как следствие на образце с развитым рельефом поверхности емкостная составляющая сигнала ЭМО должна присутствовать в особенной степени. В результате участки рельефа разной кривизны будут отличаться и по контрасту ЭМО, т.е. сигнал ЭМО на отдельном поляризационном домене может быть пространственно неоднородным. Емкостный вклад удастся выявить при сравнении динамических и импульсных зависимостей ЭМО от напряжения [11]. Этот полезный подход, однако, довольно сложен и требует существенного времени, что сдерживает его применение при анализе пространственных вариаций емкостного вклада.

Мы предлагаем новую, более простую процедуру для выявления емкостного вклада: параллельно с сигналом ЭМО детектировать изменения локальной жесткости контакта зонда с поверхностью образца. Разделение компонент сигнала ЭМО при этом сводится к поиску корреляций в изображениях сигнала ЭМО и сигнала локальной жесткости. Информативность подхода иллюстрируется на примере исследования направленно-созданных и естественных структур поляризационных доменов в монокристаллической пленке $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (001) и поликристаллической пленке $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ с ориентацией зерен (111).

2. Методика и образцы

Рассмотрим контакт металлизированного зонда АСМ с сегнетоэлектрической пленкой, осажденной на проводящий электрод (рис. 1). Если между зондом и проводящим электродом приложено напряжение, то толщина пленки в области контакта изменится из-за обратного пьезоэффекта. Отклик пьезопластины ΔH на приложенное к ней смещение U описывается выражением [12]

$$\Delta H = \mp d_{zz} U, \quad (1)$$

где d_{zz} — пьезомодуль. Перед выражением выбирается знак минус (плюс), когда направление вектора поляризации в пленке совпадает (противоположно) с направлением приложенного внешнего поля.

Для вычисления величины ΔH под зондом АСМ (рис. 1) требуется решить задачу о контакте между пьезопластиной и зондом-индентором. Анализ данной задачи, проведенный в работах [10,13,14], показывает, что выражение (1) достаточно хорошо выполняется и в АСМ-эксперименте, а коэффициент d_{zz} пропорционален локальному значению нормальной проекции вектора поляризации. Когда приложенное между электродами напряжение превышает пороговые значения переключения направления поляризации $U(\uparrow/\downarrow)$ или $U(\downarrow/\uparrow)$ в области пленки под зондом, происходит скачкообразная смена знака при ΔH . Переключение поляризации в пленке зависит от исходного состояния поляризации и предыстории изменения прикладываемого напряжения. Так, например, домен из исходного стабильного состояния поляризации \downarrow переходит в другое стабильное состояние поляризации \uparrow при нарастании напряжения от нуля до $U(\downarrow/\uparrow)$, остается в состоянии \uparrow при понижении напряжения и переходит в состояние \downarrow при напряжении $U(\uparrow/\downarrow)$, отличном от $U(\downarrow/\uparrow)$, что и обуславливает гистерезис зависимости ΔH от постоянного смещения.

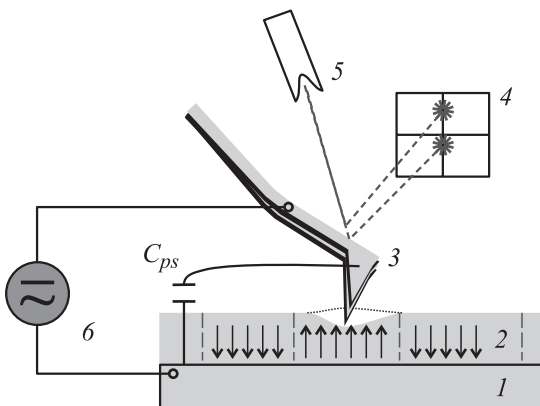


Рис. 1. Схема АСМ-эксперимента по исследованию структуры поляризационных доменов в сегнетоэлектрических пленках. 1 — проводящий электрод, 2 — сегнетоэлектрическая пленка, 3 — металлизированный зонд АСМ, 4 — позиционно чувствительный фотодатчик, 5 — лазер, 6 — источник переменного и постоянного напряжения.

В АСМ-эксперименте между зондом и электродом с сегнетоэлектрической пленкой прикладываются переменное U_{ac} и постоянное U_{dc} напряжения. Амплитуда переменного напряжения выбирается значительно меньше напряжений переключения поляризации. Возникающие на частоте переменного возбуждения локальные колебания толщины пленки (пьезоотклик) вызывают вибрации балки зонда, которые измеряются с помощью оптической системы регистрации отклонений балки (рис. 1). Распределенное емкостное (C_{ps} на рис. 1) взаимодействие зонда с образцом также приводит к вибрациям балки на частоте переменного смещения [15]. При этом чем мягче балка, тем интенсивнее такие дополнительные вибрации. Поскольку термин „пьезоотклик“ не вполне адекватно характеризует вибрации АСМ-зонда, предпочтительнее употреблять вместо него термин „электромеханический отклик“ (ЭМО). Для анализа разных вкладов в ЭМО (на практике обычно измеряется H_{ω} — амплитуда первой гармоники ЭСМ-сигнала) можно применить зависимость, аналогичную предложенной в работе [11],

$$H_{\omega} = \left[\frac{1}{k^*} \frac{dC_{ps}}{dz} \left(U_{dc} + \frac{V^{\uparrow} + V^{\downarrow}}{2} \right) \mp d_{zz} \right] U_{ac}, \quad (2)$$

где k^* — коэффициент жесткости кантилевера АСМ при условии, что оба его конца закреплены: один в держателе, а другой контактирует с поверхностью пленки; $\frac{V^{\uparrow} + V^{\downarrow}}{2}$ — среднее значение контактной разности потенциалов между зондом и поверхностью многодоменной пленки. Направления \uparrow (\downarrow) поляризации в пленке соответствуют знаку минус (плюс) перед параметром d_{zz} . Смена знака происходит при определенных потенциалах переключения поляризации $U(\uparrow/\downarrow)$ или $U(\downarrow/\uparrow)$.

Рассмотрим график зависимости $H_{\omega}(U_{dc})$, задаваемой выражением (2), положив $U_{ac} = 1$ (рис. 2). Поскольку при определенных значениях U_{dc} (равных $U(\uparrow/\downarrow)$ и $U(\downarrow/\uparrow)$) поляризация в пленке переключается, зависимость будет иметь гистерезисный вид. Форма гистерезиса может отличаться от прямоугольной и быть заметно деформированной из-за линейного по U_{dc} емкостного вклада. Такая искаженная форма действительно наблюдается в АСМ [11] (см. также ниже). В экспериментальных зависимостях, однако, всегда присутствуют шумы, что в совокупности с искаженной формой понижает точность измерения пьезомодуля d_{zz} , а также вносит неопределенность в измерения потенциалов переключения $U(\uparrow/\downarrow)$ и $U(\downarrow/\uparrow)$. Улучшить ситуацию можно, используя короткие и очень жесткие зонды с коэффициентом жесткости до 50 N/m (большое значение k^* в выражении (2) уменьшает вклад емкостного взаимодействия). Чтобы не допустить ухудшения разрешения, наступающего при истирании кончика зонда, столь жесткий зонд должен быть износостойким. Если же использовать обычные умеренно жесткие зонды (1–10 N/m), необходимо контролировать емкостный вклад.

Такой контроль возможен по виду импульсной зависимости $H'_\omega(U_{dc})$, которая измеряется следующим образом [11]. К пленке прикладываются импульсы напряжения разной высоты U_{dc} , а считывание H'_ω проводится в нулевом внешнем поле непосредственно после снятия импульса. Импульсы зондируют состояние пленки: если их амплитуда превышает потенциалы $U(\uparrow/\downarrow)$ или $U(\downarrow/\uparrow)$, то направление поляризации „переворачивается“ и скачком меняется значение H'_ω ; менее интенсивные импульсы оставляют состояние поляризации и значение H'_ω неизменными. Как показано на рис. 2, сигнал H'_ω имеет хорошо выраженный прямоугольный гистерезис, что делает возможным более точное определение параметров $U(\uparrow/\downarrow)$, $U(\downarrow/\uparrow)$ и d_{zz} . Кроме того, величина сдвига всей кривой H'_ω в вертикальном направлении (направление — вверх или вниз — определяется соотношением работ выхода материалов зонда и образца; см. также ниже) выявляет распределенный емкостный вклад. Итак, измерение импульсных зависимостей помогает оценить емкостный вклад и учесть его при анализе данных, полученных стандартными зондами и умеренной жесткостью.

Продуктивно применить эту процедуру при определении пространственных вариаций паразитного емкостного вклада оказывается сложно, поскольку измерения импульсных зависимостей в каждой точке области сканирования требуют значительных временных затрат. Однако если зафиксировать U_{dc} , то вариации емкостного вклада будут задаваться в основном локальным значением коэффициента жесткости k^* зонда АСМ, находящегося в контакте с поверхностью (см. (2)). Это открывает более простой подход к выявлению паразитного емкостного вклада по вариациям сигнала жесткости, который можно измерить в режиме модуляции силы [16]. Суть подхода,

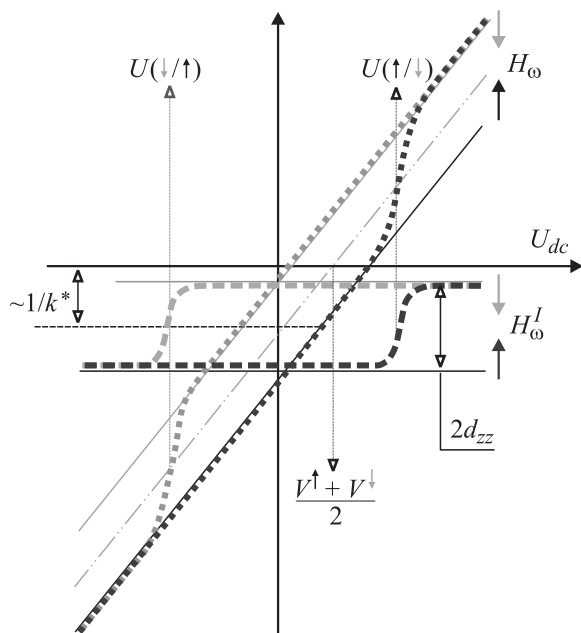


Рис. 2. Графики модельных зависимостей H_ω и H'_ω согласно (2).

как будет показано ниже, сводится к анализу корреляций и антикорреляций в изображениях сигналов ЭМО и жесткости.

Для исследований были выбраны два типа образцов. Первый — монокристаллическая пленка $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (001) толщиной ≈ 37 nm, осажденная плазменным распылением при высоком давлении на подложку $\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3$. Второй — поликристаллическая пленка $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ толщиной ≈ 100 nm, осажденная в золь-гель-процессе на подложку $\text{Pt}/\text{TiO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$; зерна пленки имели общее кристаллографическое направление вдоль [111], нормальное к плоскости подложки. На верхнюю поверхность пленок была нанесена сетка электродов, которые можно было использовать для стандартных емкостных измерений петель гистерезиса поляризация–внешнее поле [12]. Монокристаллические пленки характеризовались величиной коэрцитивного поля $\approx 4 \cdot 10^7$ V/m и уровнем спонтанной поляризации ≈ 0.4 C/m²; на поликристаллических пленках эти параметры составляли соответственно $\approx 10^7$ V/m и ≈ 0.45 C/m². Технология изготовления пленок, а также результаты исследования структуры и интегральных сегнетоэлектрических параметров образцов были описаны ранее [17,18].

АСМ-эксперименты проводились на приборе Solver P47 (НТ-МДТ, Москва), снабженном режимами контактной ЭСМ, измерения локальной жесткости и растровой литографии [19]. Использовались кремниевые зонды NSG11, покрытые проводящим слоем Pt или W_2C , с жесткостью ≈ 5 N/m, резонансной частотой около 150 kHz. Пирамидальная игла имела высоту 15–20 μm и типичный радиус закругления кончика пирамиды менее 40 nm.

3. Эксперимент и обсуждение

На рис. 3 рассмотрен пример параллельных измерений импульсных и динамических зависимостей ЭМО от напряжения. Измерения происходят следующим образом. При сканировании участка поверхности площадью ~ 2 nm² в режиме растровой литографии [19] к зонду АСМ прикладываются по определенной маске (рис. 3, a и b) импульсы напряжения; во время сканирования происходит непрерывное считывание сигнала ЭМО (рис. 3, d). На рис. 3, e показано усредненное сечение сигнала ЭМО, которое отображает как динамические H_ω , так и импульсные H'_ω зависимости от приложенного смещения (значение сигнала соответственно во время и после приложения импульса). На рис. 3, c отдельно выведена динамическая зависимость H_ω , а на рис. 3, f — импульсная зависимость H'_ω . Экспериментальные кривые на рис. 3, c и f демонстрируют хорошее согласие с модельным представлением на рис. 2. Динамическая зависимость H_ω на рис. 3, c имеет гистерезисную форму, сильно деформированную линейным по U_{dc} емкостным вкладом, что затрудняет определение значений пьезомодуля и напряжений переключения. Импульсная зависимость проявляет более

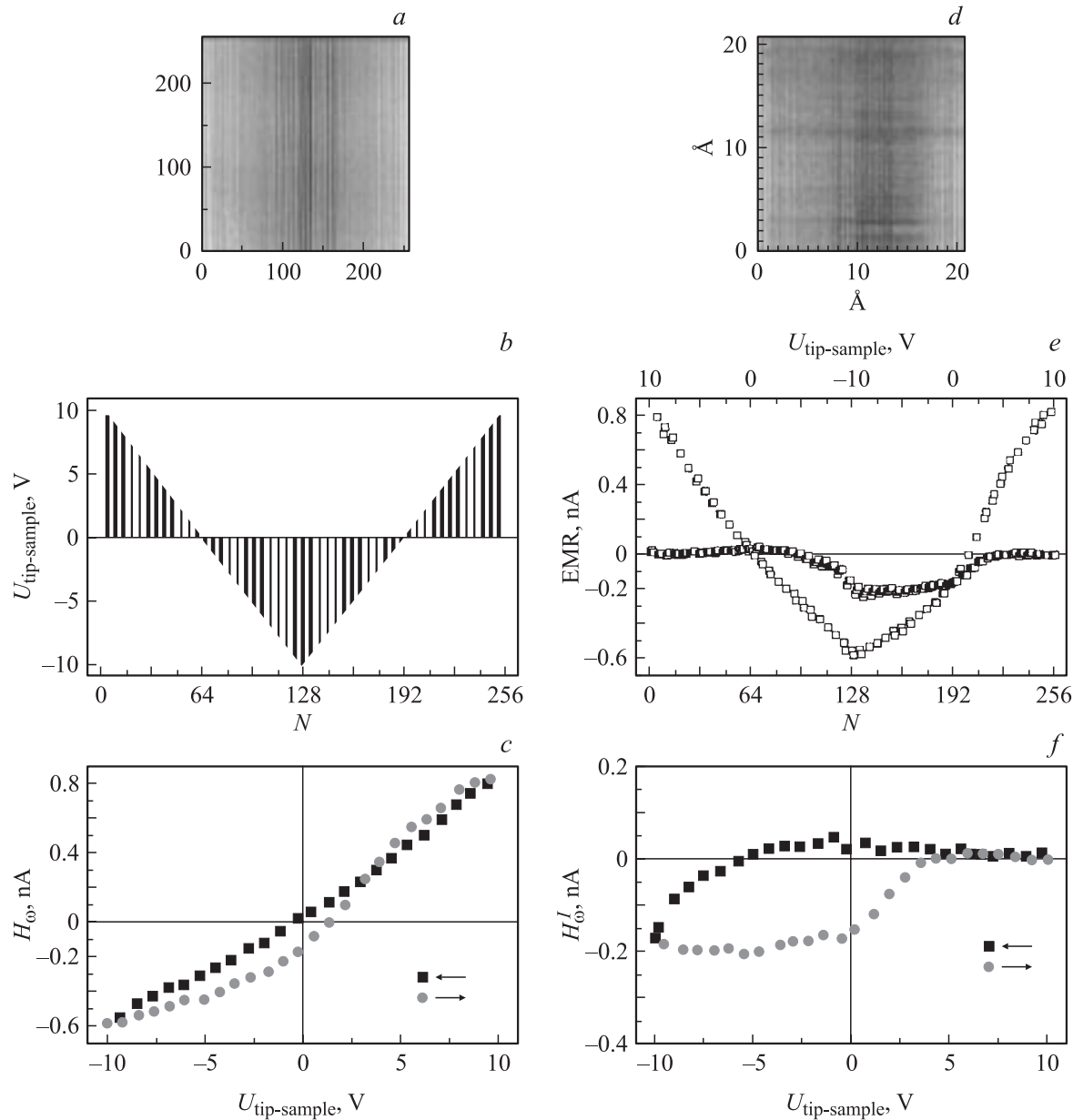


Рис. 3. Параллельное измерение локальных импульсных и динамических зависимостей сигнала ЭМО (EMR) на образце монокристаллической пленки $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (001). *a* — шаблон растровой литографии (256×256 точек); *b* — сечение изображения *a*; *c* — зависимость от напряжения для динамического ЭМО-сигнала H_ω ; *d* — изображение сигнала ЭМО, измеренного во время выполнения растровой литографии по напряжению; *e* — усредненное сечение ЭМО-изображения; *f* — зависимость от напряжения импульсного ЭМО-сигнала H_ω^I .

выраженный гистерезис, что однозначно указывает на наличие двух состояний поляризации в пленке.

Используем данные рис. 3, *f* для оценки коэрцитивного поля (поля переключения поляризации) и пьезомодуля в пленке. Импульсная зависимость H_ω^I при переходе из одного состояния в другое пересекает среднюю между двумя состояниями линию при значениях внешнего напряжения примерно $+1.5$ и -8 В. В первом приближении приложенный потенциал распределяется равномерно по всей толщине (37 нм) монокристаллической пленки, поэтому локальное коэрцитивное поле

составляет приблизительно $+4.2 \cdot 10^7$ и $-21.6 \cdot 10^7$ В/м, что при положительной полярности практически совпадает со средней величиной макроскопического коэрцитивного поля для данного образца $4 \cdot 10^7$ В/м, а при отрицательной полярности отличается от этой величины более чем в 5 раз. Асимметрия значений может быть связана с наличием встроенного электрического поля на интерфейсе пленки с несущим электродом, а также с механическими напряжениями в сегнетоэлектрике [20]. Следует также отметить, что не обязательно все приложенное напряжение падает

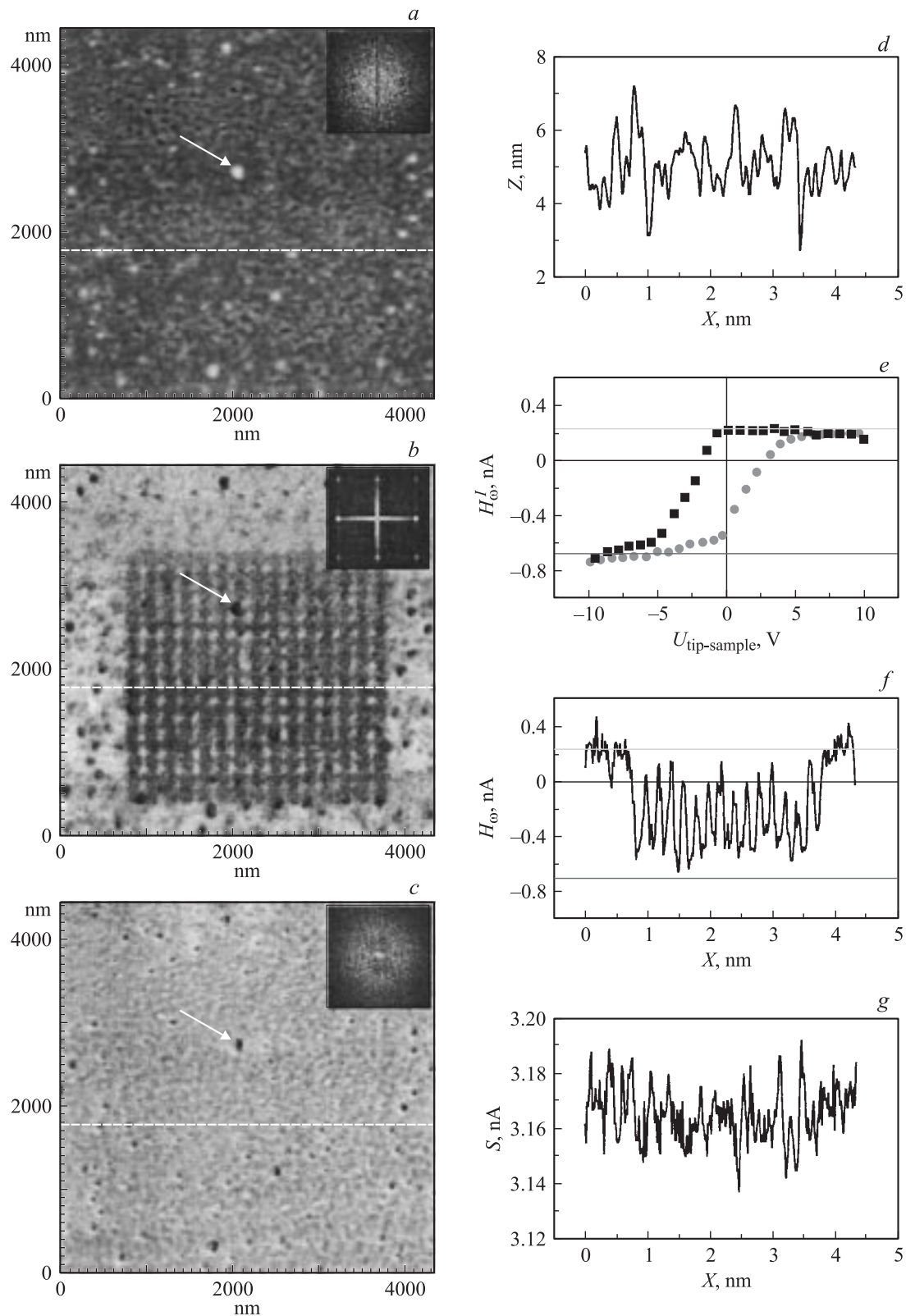


Рис. 4. Контактное ЭСМ-исследование образца монокристаллической пленки $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (001). *a* — топографическое изображение, *b* — ЭМО-изображение, *c* — изображение сигнала жесткости. Сигнал ЭМО (H_ω , сигнал MagSin в приборе Solver P47) возбуждался на частоте 30.175 kHz при амплитуде $U_{ac} = 3\text{ V}$, $U_{dc} = 0$; для возбуждения сигнала жесткости (S , сигнал Mag в приборе Solver P47) переменное напряжение на той же частоте с амплитудой 0.1 V подавалось на z -обкладки сканера, несущего образец. В правом верхнем углу каждого изображения приведены данные Фурье-анализа. Сечения сигналов топографии (*d*), ЭМО (*f*) и жесткости (*g*) получены вдоль светлых линий на соответствующих изображениях. *e* — гистерезис импульсной зависимости сигнала ЭМО.

на сегнетоэлектрической пленке; часть напряжения может распределиться на диэлектрическом зазоре АСМ-зонд-поверхность пленки [10]. Это означает, что приведенные значения локальных коэрцитивных полей можно рассматривать как оценку сверху. Согласно выражению (2) и рис. 2, высота гистерезиса сигнала H'_ω , деленная на амплитуду переменного сигнала, задает удвоенное значение пьезомодуля d_{zz} . Для вычисления значения пьезомодуля подставим в (2) амплитуду переменного напряжения, возбуждающего пьезоотклик (1 В); коэффициент перевода наноамперов в нанометры, измеренный по стандартной методике прибора Р47Н [19] (40 nm/nA); коэффициент усиления сигнала (400). В результате получаем $d_{zz} \approx (0.25 \text{ nA} \cdot 40 \text{ nm/nA}) / (1 \text{ V} \cdot 400 \cdot 2) = 12.5 \text{ pm/V}$. Найденная величина согласуется с ранее опубликованными данными, полученными с помощью АСМ на тонких пленках PbZrTiO_3 в работе [9], где величина d_{zz} составляет несколько pm/V.

Величина емкостного вклада в нулевом поле ($U_{dc} = 0$), как было отмечено выше, определяется сдвигом импульсной зависимости в вертикальном направлении. Из-за асимметрии проявления в H'_ω верхнего (+0.05 nA) и нижнего (-0.2 nA) поляризационных состояний (рис. 3, f) емкостный вклад в точку измерения гистерезиса составляет -0.075 nA, т.е. более 30% от высоты гистерезиса. При фиксированном U_{dc} (в частности, равном нулю) вариации емкостного вклада задаются в основном локальным значением жесткости k^* . Увеличение (уменьшение) жесткости в силу зависимости (2) смещает целиком петлю гистерезиса H'_ω вверх (вниз), т.е. независимо от поляризационного состояния сигнал ЭМО увеличивается (уменьшается). Если вариации k^* определять по сигналу жесткости, то на качественном уровне учет паразитного емкостного вклада можно свести к поиску и анализу совпадений в изображениях сигналов ЭМО и жесткости.

Рис. 4 объединяет совокупность данных, иллюстрирующих предложенный выше подход. Исследование велось на монокристаллической пленке $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (001) толщиной 37 nm со средней шероховатостью поверхности на уровне нескольких нанометров (см. АСМ-топографию на рис. 4, a и соответствующее ей сечение на рис. 4, d). На рис. 4, e показана характерная для данного участка пленки гистерезисная зависимость импульсного ЭМО; она выявляет два поляризационных состояния в пленке. Состояние поляризации \uparrow соответствует уровню сигнала $H_\omega \approx +0.25 \text{ nA}$, а противоположное ему состояние поляризации \downarrow наблюдается при уровне сигнала $\approx -0.7 \text{ nA}$. Полное переключение поляризации происходит при высоте импульса больше порогового, составляющего приблизительно 5 V, а дальнейшее увеличение высоты импульса практически не меняет уровня сигнала.

На рис. 4, b показано изображение сигнала ЭМО H_ω , полученное на участке поверхности, на котором предварительно методом растровой литографии были

сформированы искусственные поляризационные домены [21]. Естественное (монокристаллическое) состояние пленки соответствует светлым тонам изображения. На их фоне отчетливо наблюдается периодическая квадратная сетка (15 × 15) более темных областей, на которых осуществлялась литография — приложение импульсов напряжения с амплитудой -9 V и длительностью 1 ms. В верхнем правом углу на рис. 4, b приведен двумерный Фурье-образ изображения с четкими рефлексами, отражающими двухсотнанометровую периодичность созданной доменной структуры. Сечение сигнала ЭМО H_ω вдоль светлой линии, идущей через участок литографии, показано на рис. 4, f. На отрезке между 0.8 и 3.8 μm наблюдается периодическое колебание сигнала между верхним ($\approx +0.25 \text{ nA}$) естественным и нижним ($\approx -0.7 \text{ nA}$) искусственным состояниями.

Следует отметить, что на топографическом изображении (рис. 4, a), полученном одновременно с данными рис. 4, b, отсутствует какая-либо периодическая структура, и Фурье-образ топографического изображения имеет диффузный вид. Это подтверждает преимущественно поляризационный контраст искусственной структуры в середине изображения на рис. 4, b. Однако детальное сравнение рис. 4, a и b позволяет обнаружить довольно большое количество коррелированных изменений сигналов ЭМО H_ω и топографии. Например, на рис. 4, a стрелкой обозначено светлое пятнышко — бугорок высотой около 5 nm, который совпадает с темной областью на рис. 4, b. Такие темные области на рис. 4, b не связаны с нижним состоянием поляризации и отражают лишь изменение дополнительной емкостной составляющей в сигнале ЭМО H_ω .

На рис. 4, c приведено изображение сигнала жесткости, полученное одновременно с топографией и сигналом ЭМО. Сравнение изображений на рис. 4, b и c, а также соответствующих сечений на рис. 4, f и g показывает, что периодическая структура поляризационных доменов никак не проявляется в жесткости. С другой стороны, дополнительный вклад емкости в сигнале ЭМО выявляется по наличию совпадения контраста в сигналах жесткости и ЭМО. Для образцов с относительно гладкой поверхностью данные топографии и жесткости дают практически один и тот же объем информации о дополнительном емкостном вкладе в ЭМО. Если же поверхность имеет сильно развитый рельеф, сигнал жесткости оказывается более информативным и позволяет получить более точную картину структуры поляризационных доменов.

Необходимость одновременного измерения трех сигналов — ЭМО, топографии и жесткости — иллюстрируется на рис. 5. На нем приведены данные исследования поликристаллической пленки $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (111) толщиной 100 nm. На изображениях сигнала топографии (рис. 5, a и d) выявлена зернистая структура пленки (с характерным перепадом по высоте 30 nm). Рассмотрим зерна 1 и 2, обведенные контуром на рис. 5, a, а также зерно 3, обведенное контуром на рис. 5, d. Контраст сигнала ЭМО (рис. 5, b и e) внутри зерен 1, 2 и 3

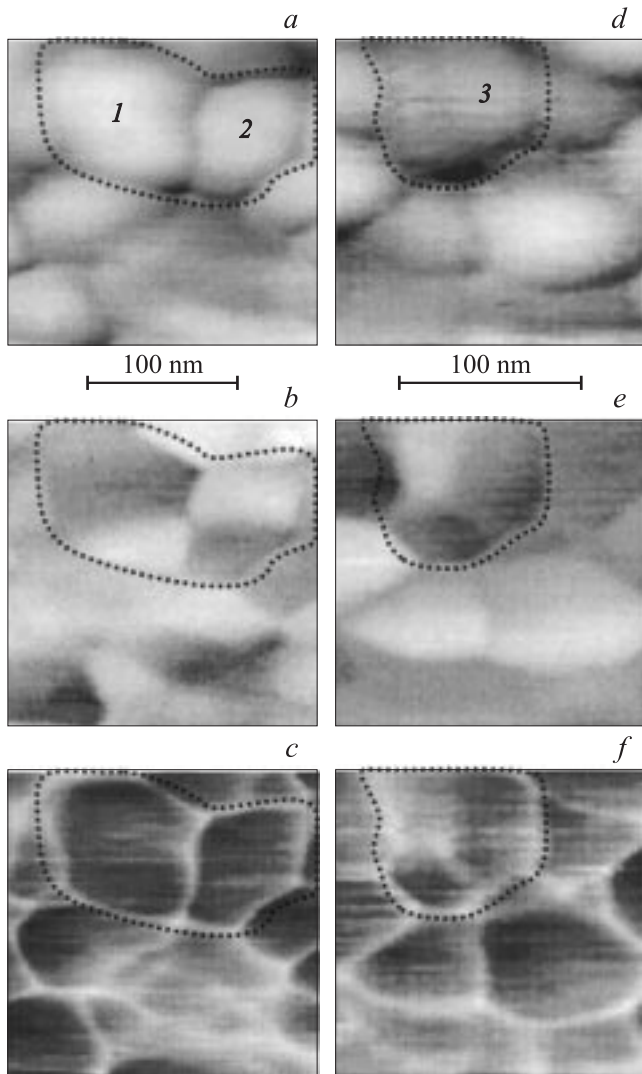


Рис. 5. Контактное ЭСМ-исследование образца поликристаллической пленки $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (111) толщиной 100 нм. *a* и *d* — топографические изображения, *b* и *e* — ЭМО-изображения, *c* и *f* — изображения сигнала жесткости. Масштабы изображений *a*–*c* и *d*–*f* — заданы отрезками под изображениями *a* и *d*. Области изображений с зернами 1–3, обсуждаемые в тексте, обведены контурами.

меняется. Отсюда можно предположить, что в каждом зерне находится несколько доменов разной поляризации. На зерне 3 сигнал жесткости (рис. 5, *f*) неоднороден по контрасту, причем возрастает и убывает практически на тех же наноскопических областях, что и сигнал ЭМО (рис. 5, *e*). Таким образом, зерно 3 не мультидоменное и поляризовано однородно. С другой стороны, сигнал жесткости (рис. 5, *c*) внутри зерен 1 и 2 имеет однородный контраст. Следовательно, каждое из этих зерен действительно содержит два различно поляризованных домена.

Для пояснения изложенного выше вернемся к выражению (2), согласно которому емкостный вклад в сигнал ЭМО (или, другими словами, величина вертикального

смещения петли гистерезиса H_{ω}^I на рис. 2) пропорционален $1/k^*$. Следует подчеркнуть, что при увеличении k^* смещение может происходить как вверх, так и вниз. Это зависит от наклона средней линии динамической петли гистерезиса и от положения точки пересечения этой средней линии с осью абсцисс (рис. 2). Заметим, что по экспериментальным данным (рис. 3, *c*) средняя контактная разность потенциалов положительна; положительна она и для областей образцов, представленных на рис. 4 и 5 [21]. Важно также, что и средний наклон динамической зависимости в этих трех случаях выбирался положительным (наклон зависимости ЭМО на рис. 3, *c* может быть и отрицательным, так как он регулируется разностью фаз между сигналом ЭМО и опорным сигналом синхронного детектора). Именно благодаря реализации этих двух условий при возрастании сигнала жесткости сигнал ЭМО также возрастает, и дополнительный вклад емкости выявляется по наличию совпадения контраста в сигналах ЭМО и жесткости. Если же наклон динамической зависимости отрицательный (положительный), а средняя контактная разность потенциалов положительная (отрицательная), то дополнительный вклад емкости должен выявляться по антикорреляции сигналов ЭМО и жесткости.

Наконец, следует уточнить два момента. Во-первых, сигнал жесткости, измеренный в режиме модуляции силы, напрямую зависит от вариаций жесткости контакта зонд–поверхность k_c [16,19], а не жесткости k^* . Во-вторых, жесткость k^* зонда, контактирующего с поверхностью, отличается от жесткости свободного зонда k . Оценим сначала масштабы изменений соотношения k^*/k . Для этого удобно рассматривать зонд в виде стержня, один конец которого зашпелен, а для другого конца возможны три условия закрепления: свободный, опертый и зашпеленный. Чем меньше свободы у второго конца стержня, тем выше жесткость всего стержня. Соотношение k^*/k в этих ситуациях можно оценить по известным (см. стр. 121 в [22]) аналитическим зависимостям слабого прогиба стержня под влиянием собственного веса. Если для простоты считать, что коэффициент жесткости пропорционален смещению середины стержня, то при переходе от свободного конца к опертому система становится на порядок жестче и еще приблизительно в 2 раза жестче при переходе от опертого конца к зашпеленному. Похожую картину поведения соотношения k^*/k в зависимости от условий закрепления дает и численное моделирование отклика зонда АСМ, контактирующего с поверхностью, которое было проведено в работе [23]. В ней условия закрепления второго конца зонда задавались величиной жесткости контакта k_c , которая вычислялась из аналитического решения контактной задачи Герца (см. стр. 46 в [22]). Для обоснования предложенного нами подхода важно, что коэффициенты k^* и k_c ведут себя одинаково при изменении локальной кривизны рельефа: оба возрастают в ямках и уменьшаются на возвышенностях. Точно такое же поведение и у измеренного в режиме модуляции силы сигнала жесткости, пропорционального k_c/k [16,19].

4. Заключение

Таким образом, в данной работе представлена комплексная методика исследования тонких сегнетоэлектрических пленок с помощью АСМ. Показана необходимость в дополнение к сигналам топографии и ЭМО проводить одновременные измерения сигнала жесткости. Сигнал жесткости позволяет осуществлять более точное определение структуры поляризационных доменов в пленке и помогает разделить в сигнале ЭМО емкостный вклад и пьезоотклик. Разработанный подход проиллюстрирован на примере исследования монокристаллических $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (001) и поликристаллических $\text{PbZr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53}\text{O}_3$ (111) сегнетоэлектрических пленок с размером кристаллитов около 100 nm.

Авторам приятно поблагодарить А. Цветкова за помощь в проведении экспериментов, а также А. Емельянова, В. Кухаря и Н. Перцева за обсуждение работы.

Список литературы

- [1] O. Kolosov, A. Gruverman, J. Hatano, K. Takahashi, H. Tokumoto. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4309 (1995).
- [2] D. Damjanovic. *Rep. Prog. Phys.* **61**, 1267 (1998).
- [3] А.С. Сигов. *Сорос. образоват. журн.* **10**, 83 (1996).
- [4] Yasuo Cho, Kenjiro Fujimoto, Yoshiomi Hiranaga, Yasuo Wagatsuma, Atsushi Onoe, Kazuya Terabe, Kenji Kitamura. *Appl. Phys. Lett.* **81**, 23, 4401 (2002).
- [5] K. Franke, H. Huelz, M. Weihnacht. *Surf. Sci.* **415**, 178 (1998).
- [6] J.W. Hong, K.H. Noh, Sang-iL Park, S.I. Kwun, Z.G. Khim. *Phys. Rev. B* **58**, 5078 (1998).
- [7] *Scanning Probe Microscopy and Spectroscopy: Theory, Techniques and Applications* / Ed. D.A. Bonnell. Wiley-VCH, N. Y. (2001). Ch. 7.
- [8] A. Gruverman, B.J. Rodriguez, R.J. Nemanich, A.I. Kingon. *J. Appl. Phys.* **92**, 2734 (2002).
- [9] M. Alexe, C. Harnagea, D. Hesse, U. Gösele. *Appl. Phys. Lett.* **79**, 242 (2001).
- [10] S.V. Kalinin, D.A. Bonnell. *Phys. Rev. B* **65**, 125 408 (2002).
- [11] S. Honga, J. Woo, H. Shin, J.U. Jeon, Y. Eugene Pak, E.L. Colla, N. Setter, E. Kim, K. No. *J. Appl. Phys.* **89**, 1377 (2001).
- [12] М. Лайнс, А. Гласс. *Сегнетоэлектрики и родственные им материалы*. Мир, М. (1981). 736 с.
- [13] S. Sridhar, A.E. Giannakopoulos, S. Suresh, U. Ramamurty. *J. Appl. Phys.* **85**, 380 (1999).
- [14] A.E. Giannakopoulos, S. Suresh. *Acta Mater.* **47**, 2153 (1999).
- [15] S.V. Kalinin. Ph. D. Thesis. <http://sergei2.kalininweb.com> (2002).
- [16] P. Maivald, H.J. Butt, S.A.C. Gould, C.B. Prater, B. Drake, J.A. Gurley, V.B. Elings, P.K. Hansma. *Nanotechnology* **2**, 103 (1991).
- [17] J. Rodriguez Contreras, J. Schubert, U. Poppe, O. Trithaveesak, K. Szot, Ch. Buchal, H. Kohlstedt, R. Waser. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **688**, C8.10 (2002).
- [18] N.A. Pertsev, J. Rodriguez Contreras, V.G. Kurhar, B. Hermanns, H. Kohlstedt, R. Waser. *Appl. Phys. Lett.* **83**, 16, 3356 (2003).
- [19] <http://www.ntmdt.ru>.
- [20] A. Gruverman, A. Kholkin, A. Kingon, H. Tokumoto. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2751 (2001).
- [21] A.V. Ankudinov, A.N. Titkov. *Proc. Int. Workshop SPM-2004. Nizhny Novgorod* (2004). P. 60.
- [22] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Теория упругости*. Физматлит, М. (2001).
- [23] U. Rabe, J. Janser, W. Arnold. *Rev. Sci. Instr.* **67**, 9, 3281 (1996).