

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение  
высшего образования «Уральский федеральный университет  
имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»

*На правах рукописи*

Чувакова Мария Артёмовна

ПЕРЕКЛЮЧЕНИЕ ПОЛЯРИЗАЦИИ, КИНЕТИКА ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ  
И ФОРМИРОВАНИЕ ДЕНДРИТНЫХ ДОМЕНОВ В МОНОКРИСТАЛЛАХ  
НИОБАТА ЛИТИЯ И ТАНТАЛАТА ЛИТИЯ

1.3.8. Физика конденсированного состояния

Автореферат  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Екатеринбург – 2021

Работа выполнена на кафедре физики конденсированного состояния и наноразмерных систем Института естественных наук и математики ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина».

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, профессор,  
**Шур Владимир Яковлевич**

Официальные оппоненты: **Сидоркин Александр Степанович**,  
доктор физико-математических наук, профессор,  
ФГБОУ ВО «Воронежский государственный университет», профессор кафедры экспериментальной физики физического факультета;

**Кострицкий Сергей Михайлович**,  
доктор физико-математических наук,  
ООО Научно-Производственная Компания «Опто-линк», г. Москва, Зеленоград, технический директор Зеленоградского отделения;

**Мишина Елена Дмитриевна**,  
доктор физико-математических наук, профессор,  
ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет», г. Москва, заведующий лабораторией фемтосекундной оптики для нанотехнологий Физико-технологического института

Защита состоится «26» ноября 2021 г. в 15:00 ч на заседании диссертационного совета УрФУ 1.3.02.06 по адресу: 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, д. 19, ауд. И-420 (зал Ученого совета).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина» <https://dissovet2.urfu.ru/mod/data/view.php?d=12&rid=2895>

Автореферат разослан «\_\_\_» \_\_\_\_\_ 2021 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета



Ищенко Алексей Владимирович

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### **Актуальность темы исследования**

Монокристаллы ниобата лития ( $\text{LiNbO}_3$ , LN) и танталата лития ( $\text{LiTaO}_3$ , LT) с регулярными доменными структурами (ДС) рассматриваются в качестве основных нелинейно-оптических материалов [1, 2] для когерентных преобразователей частоты света, включая генерацию второй гармоники [А5] и оптическую параметрическую генерацию [А6] [3]. Кроме того, следует упомянуть новые области применения регулярных ДС, включая наноэлектронику доменных стенок [4] и сегнетоэлектрическую литографию [5]. Известно, что для эффективного преобразования частоты света необходимо создавать регулярные ДС с воспроизводимостью периода около 20 нм [6]. Необходимость такой высокой точности требует глубоких знаний о кинетике доменов в монокристаллах LN и LT [7]. Объемное экранирование, являющееся единственной возможностью компенсации остаточного деполяризующего поля и стабилизации заданных метастабильных ДС, в значительной степени определяет кинетику ДС [8]. Поэтому изучение особенностей влияния процесса объемного экранирования на эволюцию ДС имеет решающее значение для создания периодически поляризованных монокристаллов LN и LT для нелинейно-оптических применений. Последнее время для увеличения эффективности и мощности преобразования длины волны особое внимание уделяется созданию регулярных ДС в LT конгруэнтного состава, легированном 8 мол.% MgO (MgOCLT) и в LT с составом близким к стехиометрическому, легированном 1 мол.% MgO (MgOSLT) [9]. Однако, кинетика ДС и переключение поляризации в этих материалах слабо изучены.

### **Степень разработанности темы исследования**

Ранее было показано, что в LN и LT поле смещения, создаваемое объемным экранированием, пропорционально степени отклонения от стехиометрического состава [10]. Процесс объемного экранирования и кинетика ДС детально изучены в монокристаллах конгруэнтного и стехиометрического составов [11-13], тогда как в кристаллах с промежуточной степенью отклонения от стехиометрического состава (NCLT) и LT, легированных оксидом магния для улучшения оптических свойств, эти свойства необходимо исследовать. Кроме того, представляет значительный интерес экспериментальное исследование формирования квазирегулярных субмикронных ДС в монокристаллах LN и LT в электрическом поле, обнаруженное ранее только в результате воздействия интенсивного лазерного излучения [14, 15].

### **Цель работы и задачи**

Цель работы – экспериментальное исследование кинетики доменов, переключения поляризации и формирования дендритных ДС в монокристаллах семейства ниобата лития и танталата лития.

Для реализации цели были сформулированы следующие основные задачи:

1. Определить основные параметры процесса переключения поляризации и выявить стадии эволюции ДС в кристаллах NCLT, MgOSLT и MgOCLT.
2. Провести детальный анализ токов переключения и петель гистерезиса в кристаллах NCLT, MgOSLT и MgOCLT.
3. Исследовать формирование самоорганизованных квазирегулярных ДС в LT при переключении с металлическими электродами и с диэлектрическим слоем.
4. Исследовать формирование дендритных доменов при переключении поляризации

в однородном поле при повышенных температурах в CLN и CLT с диэлектрическим слоем.

5. Предложить модель для объяснения процесса формирования дендритных доменов в рамках кинетического подхода и произвести компьютерное моделирование качественного изменения формы движущейся доменной стенки при запаздывании экранирования.

### **Научная новизна**

Впервые детально исследован процесс переключения поляризации и эволюция доменной структуры в монокристаллах танталата лития конгруэнтного состава, легированных 8 мол.% MgO и с составом близким к стехиометрическому, легированных 1 мол.% MgO, а также с промежуточной степенью отклонения от стехиометрического состава. Обнаружено формирование самоорганизованных квазирегулярных субмикронных полосовых доменов при переключении поляризации при комнатной температуре с металлическими электродами и поверхностным диэлектрическим слоем. Впервые выявлен эффект формирования дендритных сегнетоэлектрических доменов при переключении поляризации при повышенных температурах на примере CLN и CLT с поверхностным диэлектрическим слоем. Формирование дендритных доменов объяснено в рамках кинетического подхода, основанного на аналогии между ростом доменов и кристаллов.

### **Теоретическая и практическая значимость работы**

Впервые в сегнетоэлектриках обнаружено и изучено формирование дендритных доменов при переключении поляризации в CLN и CLT с поверхностным диэлектрическим слоем при повышенной температуре. Показано, что возможность детального изучения роста сегнетоэлектрических доменов позволяет использовать сегнетоэлектрики в качестве модельного материала для изучения формирования дендритных структур, что имеет значительную практическую значимость. Установлено, что последовательная аналогия между ростом доменов и кристаллов позволяет успешно объяснять формирование дендритных доменов. Изучение кинетики доменов и процессов переключения поляризации в актуальных для создания регулярных ДС кристаллах LT позволило изготовить преобразователи частоты лазерного излучения с высокой эффективностью.

### **Методология и методы исследования**

*In situ* визуализация эволюции ДС проводилась с помощью оптической микроскопии. Визуализация статической ДС на поверхности, выявленной селективным химическим травлением, – с помощью: (1) оптической микроскопии в режиме фазового контраста, (2) сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) и (3) сканирующей зондовой микроскопии (СЗМ). Визуализация доменов в объеме – с помощью: (1) конфокальной микроскопии комбинационного рассеяния (КМКР) и (2) микроскопии генерации второй гармоники типа Черенкова (МГВГ). Измерение токов переключения в постоянном и переменном поле, а также петель гистерезиса в переменном линейно растущем поле производилось с помощью экспериментальной установки на основе модифицированной схемы Мерца. Моделирование пространственного распределения электрического поля на движущейся доменной стенке было выполнено методом конечных элементов с использованием модулей Electrostatics и Moving Mesh программного обеспечения COMSOL Multiphysics.

### **Положения, выносимые на защиту:**

1. Кинетика ДС при переключении в NCLT и MgOSLT обусловлена движением макроскопических доменных стенок от края электрода и их слиянием с изолированными доменами, а скачкообразное ускорение переключения в MgOSLT обусловлено слиянием шестиугольных доменов большой площади.
2. Увеличение скорости переключения в MgOCLT в результате циклического переключения обусловлено образованием остаточных изолированных доменов.
3. Значительное уменьшение коэрцитивного поля без изменения формы доменов в результате сильного легирования MgO (MgOCLT), как и при приближении состава к стехиометрическому, обусловлено уменьшением концентрации объемных дефектов.
4. Формирование квазирегулярных ансамблей полосовых доменов субмикронной ширины в MgOSLT при переключении поляризации с металлическими электродами обусловлено образованием при нанесении электрода поверхностного слоя с повышенной концентрацией кислородных вакансий.
5. Формирование дендритных доменов в однородном поле при переключении поляризации при повышенных температурах в LN и LT с искусственным диэлектрическим слоем обусловлены анизотропным ростом и ветвлением полосовых доменов.
6. Качественное изменение формы доменных стенок обусловлено неэффективным экранированием при наличии диэлектрического слоя, которое увеличивает остаточное деполяризующее поле и неоднородно замедляет уширение полосовых доменов.

### **Степень достоверности и апробация результатов**

Степень достоверности проведенных исследований обеспечивается применением поверенных и калиброванных средств измерений, аттестованных методик измерений, надежной статистикой экспериментов, применением современных и независимых методов обработки экспериментальных данных, согласием с результатами других авторов и непротиворечивостью известным физическим моделям.

Основные результаты работы были представлены на 26 российских и международных конференциях и симпозиумах, включая 11 докладов, сделанных лично автором: 1-2) 20<sup>й</sup> и 21<sup>й</sup> Всероссийских конференциях по физике сегнетоэлектриков (ВКС-XX, Красноярск, 2014; ВКС-XXI, Казань, 2017); 3-4) International conference “Piezoresponse force microscopy and nanoscale phenomena in polar materials” (PFM-2014, Екатеринбург, PFM-2015 Сингапур); 5-6) European conferences on applications of polar dielectrics (ЕСАРD, Вильнюс, 2014, Москва, 2018); 7-8) Russia/CIS/Baltic/Japan symposia on ferroelectrics (RCBJSF, Рига, 2014, Санкт-Петербург, 2018); 9) Joint Conference of 9th Asian Meeting on Ferroelectrics and 9th Asian Meeting on Electroceramics (AMF-AMEC-2014, Шанхай), 10-11) International Symposium on Ferroic Domains and Microto Nanoscopic Structures (ISFD -12, Нанкин, ISFD -16, Ванкувер), 12) International workshop on phase transitions and inhomogeneous states in oxides (PTISO, Казань, 2015); 13) 13th European Meeting on Ferroelectricity (Попто, 2015), 14) Joint RCBJSF-IWRF Conference (Мацуэ, 2016); 15-16) International workshop “Modern nanotechnologies” (IWMN, Екатеринбург, 2015; 2016); 17-18) International conference “Scanning probe mi-

croscopy” (SPM, Екатеринбург, 2017, 2018); 19) 25th International Conference on Advanced Laser Technologies (ALT’17, Бусан, 2017), 20) International Workshop on Topological Structures in Ferroic Materials (ТОРО 2019, Прага), 21) CLEO/Europe-EQEC (Мюнхен, 2019), 22) International Symposium Fundamentals of Laser Assisted Micro- and Nanotechnologies (Санкт-Петербург, 2019), 23) International conference “Mechanisms and Non-linear Problems of Nucleation and Growth of Crystals and Thin Films (MGCTF’19, Санкт-Петербург, 2019), 24) Joint International Conference “Scanning probe microscopy and Russia-China Workshop on Dielectric and Ferroelectric Materials” (SPM-2019-RCWDFM, Екатеринбург, 2019), 25) 13th International Conference “Functional Materials and Nanotechnologies” (FM&NT-2020, Вильнюс) 26) X Международной конференции по фотонике и информационной оптике (Москва, 2021).

### **Публикации и личный вклад автора**

Основные результаты опубликованы в 45 печатных работах, в том числе в 10 статьях в рецензируемых научных изданиях, входящих в международные базы цитирования Scopus и Web of Science, и в 35 тезисах международных и Всероссийских конференций. Диссертационная работа выполнена с использованием оборудования Уральского центра коллективного пользования «Современные нанотехнологии» ИЕ-НиМ УрФУ в рамках исследований, проводимых при частичной поддержке РФФ (гранты №14-12-00826, 2014-2016 гг.; №14-12-00826, 2017-2018 гг.; №19-12-00210, 2019-2021 гг.), РФФИ (грант №18-29-20077, 2018-2020 гг.), а также стипендий Губернатора Свердловской области (2017/18 и 2018/2019 уч.г.), Президента Российской Федерации и Правительства Российской Федерации (приказ №1127 от 11.12.2018, приказ №1193 от 19.12.2018).

Основные результаты были получены лично автором или при его активном участии. Выбор направления исследований, обсуждение результатов и формулировка задач проводились с научным руководителем д.ф.-м.н., профессором В.Я. Шуром. Анализ и обработка результатов проводились лично автором. Исследования ДС проводились совместно с к.ф.-м.н., с.н.с. А.Р. Ахматхановым. Визуализация ДС методами оптической микроскопии проводилась лично автором, методом СЭМ – совместно с к.ф.-м.н., с.н.с. Д.С. Чезгановым, методом СМПО – совместно с к.ф.-м.н., н.с А.П. Турыгиным, методом МГВГ – совместно с к.ф.-м.н., с.н.с. Д.О. Аликиным, методом КМКР – совместно с к.ф.-м.н., с.н.с. П.С. Зеленовским, моделирование производилось совместно с к.ф.-м.н., н.с. М.С. Кособоковым и к.ф.-м.н., с.н.с. А.И. Лобовым.

### **Структура и объем диссертации**

Диссертационная работа состоит из введения, 5 глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений и списка литературы. Общий объем работы составляет 115 страниц, включая 65 рисунков, 8 таблиц, список литературы из 117 наименований.

## **ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

Во **Введении** обоснована актуальность темы диссертации и степень ее разработанности, сформулированы цели и задачи работы, изложены положения, выносимые на защиту, определены объекты исследования, показана научная новизна результатов, а также теоретическая и практическая значимость проведенных исследований, описаны методология и методы исследования, приведены сведения о достоверности

и апробации результатов, о публикациях и личном вкладе автора.

**Первая глава** является обзорной. В ней разбирается современное состояние исследований процессов переключения и эволюции сегнетоэлектрической ДС во внешнем электрическом поле, обсуждаются современные представления о роли различных механизмов экранирования. Описаны физические свойства и особенности ДС монокристаллов семейства LN и LT. Представлен обзор современных методов визуализации ДС сегнетоэлектриков на поверхности и в объеме и основных тенденций доменной инженерии.

**Вторая глава** является методической и содержит характеристики исследуемых образцов, а также описание экспериментальных установок и методик.

Процесс переключения поляризации и кинетика ДС исследовались в монокристаллах семейства LT (Таблица 1): (1) NCLT – с составом близким к конгруэнтному; (2) MgOCLT конгруэнтного состава, легированный 8 мол.% MgO; (3) MgOSLT с составом близким к стехиометрическому, легированный 1 мол.% MgO. Формирование дендритных ДС исследовалось в конгруэнтных монокристаллах ниобата лития (CLN) и танталата лития (CLT).

Все образцы представляли собой пластины толщиной 0,5 и 1 мм, вырезанные перпендикулярно полярной оси Z. Полярные поверхности после механохимической полировки имели шероховатость не более 2 нм.

Для переключения поляризации использовались твердотельные (прозрачный оксид индия-олова  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Sn}$  (ИТО) и непрозрачный Cr толщиной 100 нм) и жидкие (насыщенный водный раствор LiCl) электроды.

Таблица 1 – Исследуемые материалы

Образец	Производитель	Метод получения
NCLT	АО "Фомос-Материалы" Россия	Метод Чохральского
MgOCLT	Yamaju Ceramics, Япония	Метод Чохральского
MgOSLT	Oxide Corp., Япония	Метод Чохральского с двойным тиглем
CLT	Gooch & Housego, США	Метод Чохральского
CLN	Oxide Corp., Япония	Метод Чохральского

Для исследования переключения поляризации с одновременной регистрацией тока переключения и эволюции ДС использовалась установка на основе оптического поляризационного микроскопа LMA10 (CARL ZEISS, Германия), на предметном столике которого располагалась ячейка с образцом (Рисунок 1). Последовательность мгновенных изображений ДС, полученных в проходящем свете в режиме светлого поля, регистрировалась с помощью высокоскоростной камеры Mini UX100 (Photron, США). Переключающие импульсы напряжением до 15 кВ и длительностью от 50 мс до 150 с генерировались с помощью платы сбора данных NI-6251 (National instruments, США) и усиливались высоковольтным усилителем TREK 20/20c (TREK, США). В качестве диэлектрического слоя использовались пленки фоторезиста AZ nLOF 2020 (Microchemicals GmbH, Германия) или  $\text{SiO}_2$ . Эксперименты при повышенных температурах производились на нагревательном столике THMS 600 (Linkam,

Великобритания) в атмосфере гексафторида серы (SF<sub>6</sub>), что позволяло избежать поверхностного пробоя.

Для визуализации ДС удалялись электроды и диэлектрические слои и проводилось селективное химическое травление в HF в течение 60 с для LN и 20 мин для LT. Оптическая визуализация производилась в проходящем свете в режиме фазового контраста или в отраженном свете в режиме темного поля (Olympus BX51, Olympus, Япония). Визуализация с высоким пространственным разрешением производилась с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) (Auriga CrossBeam, Carl Zeiss, Германия) и сканирующей зондовой микроскопии в режиме сканирующей микроскопии пьезоэлектрического отклика (СМПО) (NTEGRA Aura, НТ-МДТ, Россия). Визуализация ДС в объеме осуществлялась с помощью: (1) конфокальной микроскопии комбинационного рассеяния (КМКР) (alpha300 AR, WITec, Германия) [16], (2) микроскопии генерации второй гармоники типа Черенкова (МГВГ) на базе модифицированной установки NTEGRA Spectra, НТ-МДТ, Россия [17].

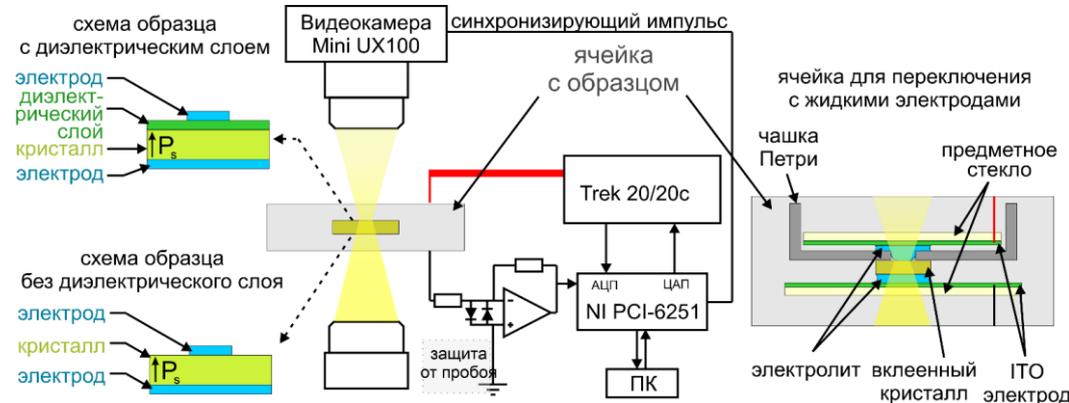


Рисунок 1 – Схема установки с ячейкой для переключения с жидкими электродами.

**Анализ токов переключения** в постоянном и растущем поле производился с использованием теории Колмогорова-Аврами (К-А), модифицированной для переключения в ограниченном объеме [18]. Рассматривались две модели роста:  $\alpha$ - модель с непрерывным образованием новых доменов и  $\beta$ -модель с ростом только существующих доменов, а также геометрическая катастрофа (изменением размерности роста). Для  $\alpha$ -модели в растущем поле [19]:

$$j(t) = 4P_s A n \frac{(t-t_{st})^{2n+1}}{t_{0\alpha}^{2n+2}} \exp \left[ - \left( \frac{t-t_{st}}{t_{0\alpha}} \right)^{2n+2} \right] + j_0, \quad (1)$$

где  $P_s$  – спонтанная поляризация,  $A$  – площадь электрода,  $n$  – размерность роста,  $t_{0\alpha}$  – характерное время,  $t_{st}$  – время начала переключения,  $j_0$  – ток смещения.

Для  $\beta$ -модели при переключении в ограниченном объеме [20]:

$$j(t) = 2P_s A \left[ 2n \left( 1 - \frac{(t-t_{st})}{t_m} \right) - \frac{(t-t_{st})}{t_m} \right] \frac{(t-t_{st})^{2n-1}}{t_{0\beta}^{2n}} \exp \left[ - \left( \frac{t-t_{st}}{t_{0\beta}} \right)^{2n} \left( 1 - \frac{(t-t_{st})}{t_m} \right) \right] + j_0, \quad (2)$$

где  $t_{0\beta}$  – характерное время,  $t_m$  – учитывает взаимодействие доменов с границами переключаемой области.

Полевые зависимости характерных времен аппроксимировались активационной зависимостью:

$$t_0(E) = t_0^{\min} \exp(-E_{ac}/E) \quad (3)$$

где  $E_{ac}$  – поле активации,  $t_0^{\min}$  – характерное время в пределе больших полей.

**Анализ петель гистерезиса** при приложении треугольных импульсов поля (Таблица 2), позволял определить зависимость коэрцитивного поля ( $E_c$ ) от скорости изменения поля ( $R = dE/dt$ ), которое изменялась по степенному закону [13]:

$$E_c(R) = E_c^{qs} + A \cdot R^\gamma \quad (4)$$

где  $E_c^{qs}$  – коэрцитивное поле для квазистатического переключения.

**Релаксация поля объемного экранирования ( $E_{bscr}$ ).** Из токов, полученных при переключении импульсами поля специальной формы (Рисунок 2б), определялись коэрцитивные поля прямого ( $E_c^+$ ) и обратного ( $E_c^-$ ) переключения. Между циклами переключения выдерживалась пауза ( $t_d$ ) для восстановления  $E_{bscr}$ . Далее строилась зависимость величины поля смещения ( $E_{bias} = \frac{1}{2}(E_c^+ + E_c^-)$ ) от интервала времени между прямым и обратным переключением ( $t_i$ ). Для определения параметров объемного экранирования проводилась аппроксимация  $E_{bias}(t_i)$  дробно-экспоненциальный видом зависимости с введением медленно-релаксирующей составляющей поля объемного экранирования ( $E_{bl}$ ) [21]:

$$E_{bias}(t_i) = \frac{1}{2} (E_{bl} + (2E_{bmax} - E_{bl}) \exp[-(t_i/\tau)^\beta]), \quad (5)$$

где  $E_{bmax}$  – максимальная величина поля смещения,  $\tau$  – характерное время,  $\beta$  – показатель степени.

Таблица 2 – Параметры переключающих импульсов.

Образец	Кинетика ДС и токи переключения		Анализ петель гистерезиса				Коэрцитивное поле $E$ , кВ/мм
	$E$ , кВ/мм	$dE/dt$ , кВ/(мм·с)	Поле объемного экранирования		$t_d$ , мин		
	$E$ , кВ/мм	$dE/dt$ , кВ/(мм·с)	$E$ , кВ/мм	$dE/dt$ , кВ/(мм·с)		$E_{II}$ , кВ/мм	
NCLT	-	0,2-13,2	12,7	12,7	6	10	13
MgOSLT	0,8-1	-	6	12	0	40	2,2
MgO8CLT	3,5	-	-	-	-	-	6,5

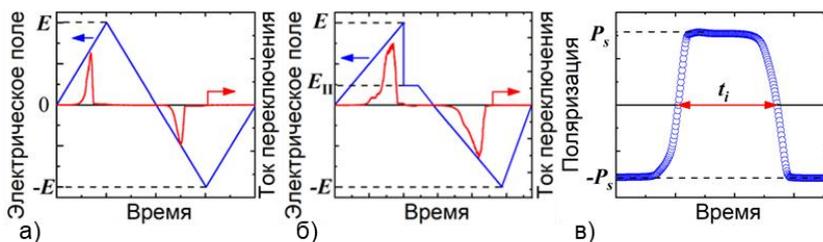


Рисунок 2 – Импульсы поля (синие кривые) для измерения: (а) коэрцитивного поля и тока переключения и (б) поля объемного экранирования. Токи переключения - красные кривые. (в) Измерение времени между прямым и обратным переключением ( $t_i$ ) по зависимости поляризации от времени. Параметры импульсов приведены в Таблица 2.

**Методика создания регулярных доменных структур.** Регулярные доменные структуры (РДС) создавались путем переключения поляризации за счет приложения электрического поля к периодическим полосовым электродам, созданным на полярной поверхности кристалла методами фотолитографии. При комнатной температуре использовались жидкие электроды, а при повышенной – твердотельные (Cr).

**Методика компьютерного моделирования движения доменной стенки.** Моделирование пространственного распределения электрического поля на движущейся доменной стенке было выполнено методом конечных элементов с использованием

модулей Electrostatics и Moving Mesh программного обеспечения COMSOL Multiphysics.

**Третья глава** посвящена исследованию особенностей переключения поляризации и кинетики ДС в монокристаллах семейства ЛТ с использованием жидких электродов, а также созданию РДС.

**(1) Танталат лития с составом близким к конгруэнтному (NCLT).**

Состав монокристалла NCLT  $[Li] / ([Li] + [Ta]) = 0,489$  был определен из зависимости температуры фазового перехода от концентрации [10].

Эволюция ДС изучалась *in situ* при переключении с жидкими электродами в линейно растущем поле (Таблица 2). Изолированные домены имеют треугольную форму со стенками, ориентированными вдоль X направлений.

Эволюцию ДС можно разделить на две стадии. На первой – зарождается и растет большое количество изолированных доменов (Рисунок 3а,б). На второй стадии определяющую роль играет движение макроскопической доменной стенки, которая формируется на краю электрода. Эволюция ДС существенно зависит от скорости нарастания поля  $dE/dt$ . При малой скорости ( $dE/dt = 5$  кВ/(мм·с)) переключение происходит за счет скачкообразного движения макроскопической доменной стенки (Рисунок 3а). При большой скорости ( $dE/dt = 12,5$  кВ/(мм·с)) наблюдается значительный рост изолированных доменов до слияния с макроскопической доменной стенкой (Рисунок 3б).

Анализ токов переключения проводился с учетом стадий эволюции ДС (Рисунок 3). Переключение на первой стадии соответствовало  $\alpha$ -модели К-А (Рисунок 3в) и ток переключения аппроксимировался формулой (1) для двумерного роста в линейно растущем поле с одним свободным параметром  $t_{0\alpha}$ . Для малой скорости нарастания поля  $t_{0\alpha} = (183 \pm 7)$  мс, а для большой –  $t_{0\alpha} = (4,0 \pm 0,1)$  мс (Рисунок 3в, г). Ток на второй стадии для большой скорости нарастания поля имеет значительный вклад от роста и слияния доменов (Рисунок 3г), и был аппроксимирован формулой (2) соответственно  $\beta$ -модели К-А для двумерного роста в ограниченном объеме со свободными параметрами  $t_{0\beta}$  и  $t_m$ .  $t_{0\beta} = (5,1 \pm 0,1)$  мс,  $t_m = (500 \pm 10)$  мс.

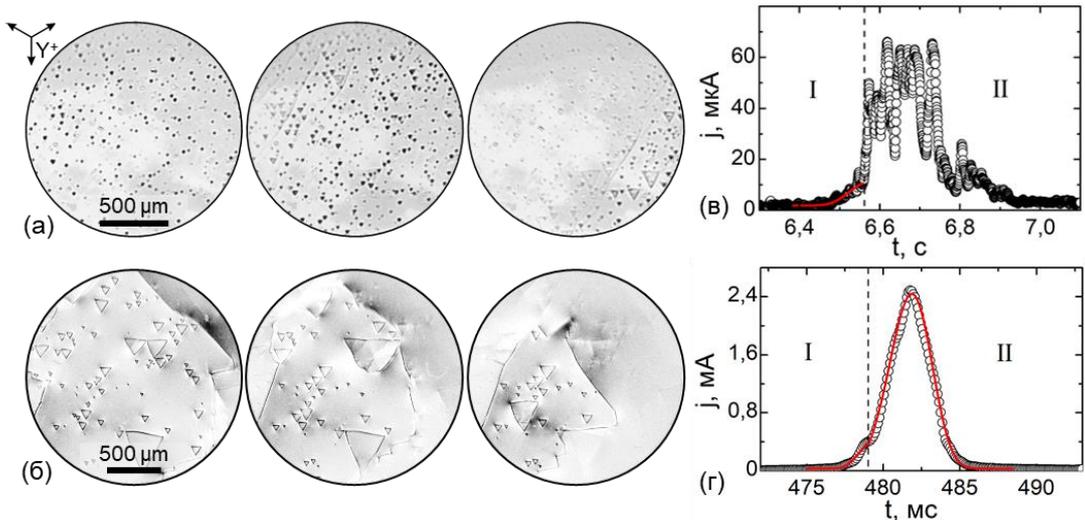


Рисунок 3 – Кинетика ДС и форма тока переключения при переключении с малой (а,в) и большой (б,г) скоростью нарастания поля. Интервал между кадрами (а) 100 мс, (б) 3 мс. Оптическая микроскопия, проходящий свет.

Анализ петель гистерезиса в диапазоне  $dE/dt$  от 0,5 до 25 кВ/(мм·с) (Таблица 2) показал, что  $E_c^+ = 12,4$  кВ/мм и практически не зависит от  $dE/dt$ . Анализ зависимости  $E_{bias}(t_i)$  позволил получить параметры процесса объемного экранирования:  $E_{bmax} = (12,5 \pm 1,5)$  кВ/мм,  $E_{bl} = (3,8 \pm 0,1)$  кВ/мм  $\tau = (1,5 \pm 0,3)$  с. Таким образом, к известным из литературы [10, 21–23]  $E_c^+$ ,  $E_{bmax}$ ,  $E_{bl}$  и  $\tau$  для конгруэнтного и стехиометрического составов добавлена точка для промежуточного состава, которая подтверждает линейный характер зависимости от отклонения состава от стехиометрического (Рисунок 4).

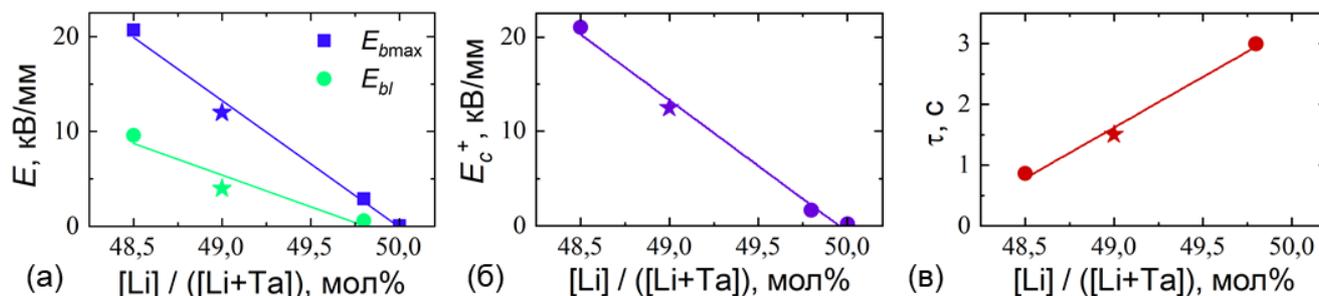


Рисунок 4 – (а) Зависимость полей объемного экранирования, (б) коэрцитивных полей прямого переключения и (в) характерного времени объемного экранирования от отклонения состава от стехиометрического. Звездочкой выделены измеренные в данной работе точки.

## (2) Конгруэнтный танталат лития, легированный 8 моль% MgO (MgOCLT).

При переключении в постоянном поле (Таблица 2) наблюдался рост изолированных треугольных доменов со стенками, ориентированными вдоль X направлений (Рисунок 5а-в) как и в CLT [10, 24]. Слияние доменов приводило к непрерывному движению доменных стенок и плавному току переключения (Рисунок 5).

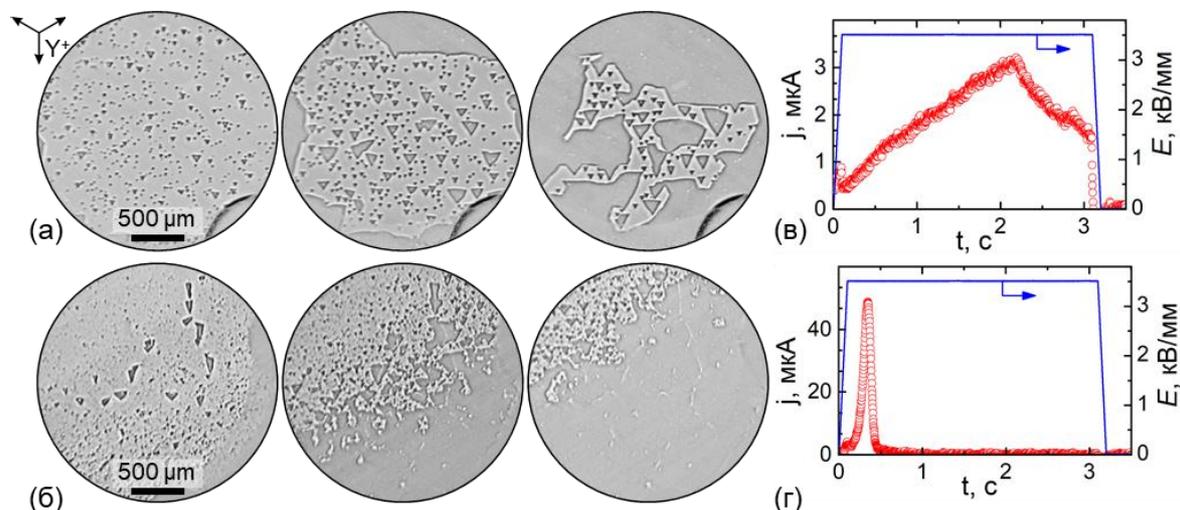


Рисунок 5 – Кинетика ДС: (а) первое переключение, интервал между кадрами 1 с, (б) последующие переключения, интервал между кадрами 100 мс. Токи переключения для (в) первого и (г) последующих переключений и форма импульса поля. Оптическая микроскопия, проходящий свет.

Кинетика ДС для первого и последующих переключений качественно различалась (Рисунок 5). Концентрация зародышей увеличивается от  $150 \text{ мм}^{-2}$  при первом переключении до  $600 \text{ мм}^{-2}$  при последующих переключениях (Рисунок 5) из-за образования остаточных доменов микронных размеров (Рисунок 6а) после первого переключения на обеих полярных поверхностях. Увеличение концентрации зародышей

значительно ускоряет переключение (Рисунок 5б). Наблюдается две стадии эволюции ДС. На первой медленной стадии образуются и растут треугольные домены (Рисунок 5а), а на второй – быстро безостановочно перемещается граница переключенной области, образующейся на краю электрода (Рисунок 5б).

Токи переключения были проанализированы в рамках модифицированной модели К-А в соответствии со стадиями эволюции ДС (Рисунок 6б). Ток переключения на первой стадии был аппроксимирован формулой, соответствующей  $\alpha$ -модели К-А (Формула (1)). Вторая часть тока переключения анализировалась как суперпозиция движения границы переключенной области и роста изолированных треугольных доменов на остальной части электрода, соответствующего  $\beta$ -модели:

$$j(t) = 4P_s V \sqrt{2RVt - V^2 t^2} + 4P_s \frac{t}{t_{0\beta}} * \frac{1}{t} \exp\left(-\left(\frac{t}{t_{0\beta}}\right)^2\right) S_1 \quad (6)$$

где  $V$  – скорость границы,  $R$  – радиус электрода,  $S_1 = \left[1 - \frac{1}{\pi} \arccos\left(\frac{R-Vt}{R}\right) + \frac{R-Vt}{\pi R^2} \sqrt{2RVt - V^2 t^2}\right]$  – доля площади области, не переключенной движением границы.

Первое слагаемое в формуле (6) соответствует движению границы, а второе –  $\beta$ -модели для двумерного роста в еще не переключенной области.

Характерные времена имеют активационный тип полевой зависимости (Рисунок 7а) с полем активации  $(33 \pm 1)$  кВ/мм.

Скорость границы линейно зависит от превышения поля над порогом (Рисунок 7б):

$$V(E) = \mu(E - E_{th}) \quad (7)$$

где  $\mu$  – подвижность границы и  $E_{th}$  – пороговое поле.  $\mu = (0,91 \pm 0,03)$  мм/(кВ·с),  $E_{th} = (3,8 \pm 0,1)$  кВ/мм.

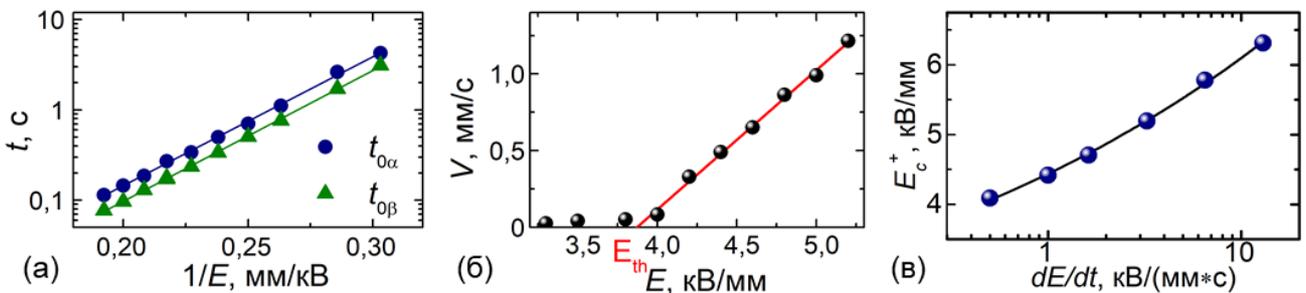


Рисунок 7 – (а)  $t_{0\alpha}(E)$  и  $t_{0\beta}(E)$ . Аппроксимация формулой (3). (б) Полевая зависимость скорости границы. Аппроксимация формулой (7). (в) Зависимость коэрцитивного поля от скорости нарастания внешнего поля. Аппроксимация формулой (4).

Анализ петель гистерезиса позволил построить зависимость  $E_c^+(R)$  (Таблица 2) (Рисунок 7в). Определено коэрцитивное поле для квазистатического переключения  $E_c^{qs} = 1,2$  кВ/мм.

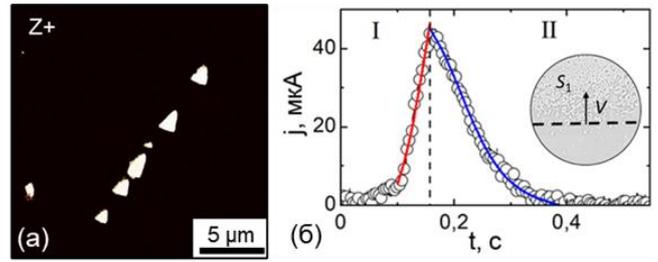


Рисунок 6 – (а) Изображение остаточных доменов. СМПО. (в) Аппроксимация тока переключения формулами (1) и (2). На вставке - схема второй стадии эволюции ДС.

### (3) *Стехиометрический танталат лития, легированный 1 моль% MgO.*

Наблюдался рост изолированных доменов шестиугольной формы со стенками, ориентированными вдоль  $Y$  направлений, с быстрым восстановлением шестиугольной формы после слияния доменов (эффект стабильности формы [24]) (Рисунок 8а-в)

Выявлены три стадии эволюции ДС. Первая – представляет собой непрерывное зародышеобразование и рост шестиугольных доменов (Рисунок 8г), а вторая – начинается после формирования макроскопических  $Y$  доменных стенок вблизи края электрода (Рисунок 8д), которые движутся скачкообразно при слиянии доменов большой площади. На третьей стадии наблюдается движение плоских доменных стенок, сливающихся с изолированными доменами (Рисунок 8е).

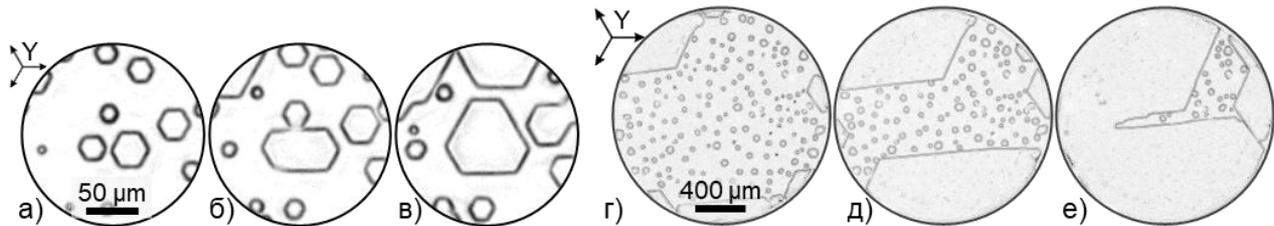


Рисунок 8 – (а)-(в) Восстановление шестиугольной формы после слияния доменов. Интервал между кадрами 0,8 мс. (г)-(е) Эволюция ДС при переключении в поле 1 кВ/мм. Интервал - 310 мс. Оптическая микроскопия, проходящий свет.

Полученный ток переключения был разделен на три части (Рисунок 9), соответствующие стадиям эволюции ДС. На первой части ток был аппроксимирован формулой (1) для  $\alpha$ -модели К-А. Наблюдается активационный тип полевой зависимости характерного времени с полем активации  $6,8 \pm 0,1$  кВ/мм.

Анализ петель гистерезиса в диапазоне  $dE/dt$  от 0,5 до 10 кВ/(мм·с) (Таблица 2) позволил построить зависимость  $E_c(R)$  и определить  $E_c^{qs} = 150$  В/мм. Анализ зависимости  $E_{bias}(t_i)$  позволил получить параметры процесса объемного экранирования:  $E_{bmax} = 0,4$  кВ/мм,  $E_{bl} = 0,5$  кВ/мм  $\tau = 6,7$  с. Таким образом, показано значительное уменьшение полей объемного экранирования при легировании MgO [21], а значит концентрации полярных дефектов.

#### **Создание регулярных ДС.**

Выявленные особенности кинетики ДС были использованы для оптимизации условий переключения при создании регулярной ДС в MgOSLT, MgOCLT и MgOLN для преобразования длины волны лазерного излучения методом генерации второй гармоники с использованием эффекта фазового квазисинхронизма и для реализации параметрической генерации света [6]. В MgOSLT и MgOCLT при непрерывной генерации света получена выходная мощность 15 Вт с максимальной эффективностью преобразования 24%.

**Четвертая глава** посвящена исследованию формирования квазирегулярных ДС в MgOSLT и в NCLT при переключении поляризации с металлическими электродами (Cr), а также с жидкими электродами и диэлектрическим слоем.

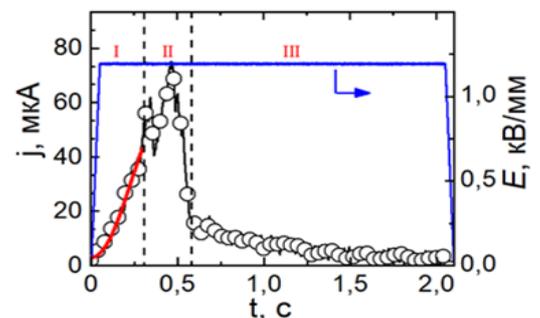


Рисунок 9 – Импульс поля и ток переключения. Первая часть тока аппроксимирована формулой (1).

(1) *Переключение MgOSLT с электродами из Cr* приводит к качественному отличию ДС на полярных поверхностях. На  $Z^+$  полярной поверхности образуются шестиугольные домены (Рисунок 10а), а на  $Z^-$  поверхности длительное травление позволило выявить квазирегулярные ансамбли полосовых доменов субмикронной ширины, ориентированные вдоль  $Y$  направлений (Рисунок 10б), что свидетельствует о существовании в объеме заряженной доменной стенки (ЗДС) (Рисунок 10в).

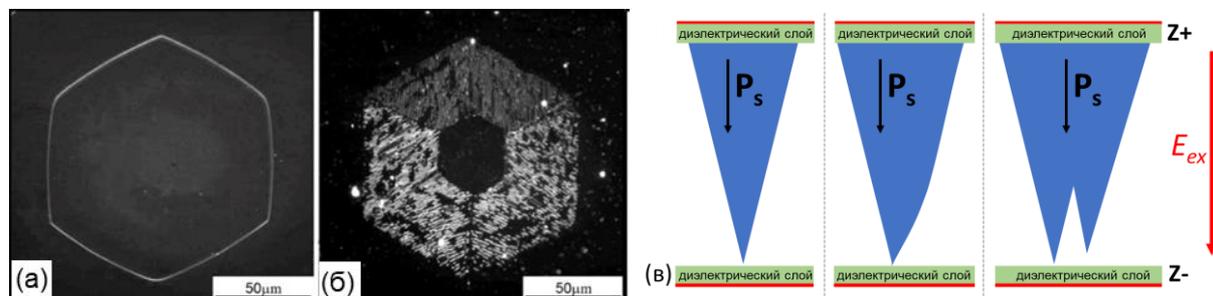


Рисунок 10 – Домен (а) на  $Z^+$  поверхности и (б) на  $Z^-$  поверхности. Оптическая микроскопия, темное поле. (в) Схема ДС с ЗДС в образце с диэлектрическими слоями.

Для объяснения формирования ЗДС следует учесть, что при нанесении электрода происходит образование поверхностного слоя с повышенной концентрацией кислородных вакансий за счет окисления пленки хрома [25]. Этот слой влияет на переключение поляризации аналогично диэлектрическому слою, уменьшая эффективность внешнего экранирования и увеличивая остаточное деполяризующее поле. Увеличение площади домена на  $Z^+$  поверхности происходит за счет генерации ступеней на поверхности. Прямое прорастание обусловлено движением кинков в полярном направлении. Замедление прямого прорастания вблизи  $Z^-$  поверхности под действием деполяризующего поля увеличивает наклон стенки и плотность связанного заряда на ней (Рисунок 10). Под действием деполяризующего поля, превышающего порог генерации ступеньки в объеме, на стенке образуется дополнительный зубец (Рисунок 10в). Многократное повторение этого процесса приводит к образованию вблизи  $Z^-$  поверхности квазирегулярной доменной структуры с ЗДС.

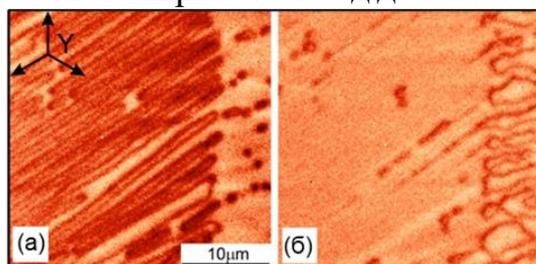


Рисунок 11 – ДС на глубине: (а) 1 мкм, (б) 10 мкм от  $Z^-$  поверхности. КМКР

Толщина ЗДС, измеренная с помощью КМКР, составила 10 мкм (Рисунок 11). Аналогичный эффект наблюдался ранее в CLN [26]. Самоорганизованный характер формирования ДС подтверждается тем, что период структуры ( $1,2 \pm 0,3$ ) мкм не зависит от величины поля.

(2) *Переключение поляризации с диэлектрическим слоем и с жидкими электродами.*

Исследование влияния диэлектрического слоя на формирование самоорганизованных структур было продолжено в NCLT со слоем фоторезиста на одной из полярных поверхностей.

Показано, что при переключении с фоторезистом на  $Z^+$  поверхности, на  $Z^+$  поверхности образуются цепи доменов (Рисунок 12а,б), а на  $Z^-$  поверхности – треугольные остаточные домены. Средний период доменов – ( $300 \pm 50$ ) нм, диаметр – от 50 до

300 нм. Переключение с фоторезистом на Z- поверхности приводит к образованию на Z+ поверхности треугольных доменов, а на Z- поверхности – цепей доменов (Рисунок 12в,г). При этом область без диэлектрического слоя переключается полностью. Средний размер изолированных доменов в цепях –  $(300 \pm 50)$  нм. Таким образом показано формирование ЗДС при переключении с диэлектрическим слоем.

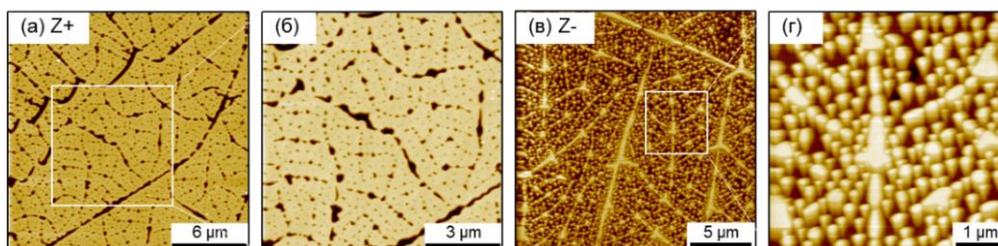


Рисунок 12 – ДС на (а), (б) Z+ и на (в), (г) Z- поверхностях. СЭМ.

**Пятая глава** посвящена исследованию дендритных ДС, возникающих при переключении поляризации при повышенных температурах в CLN и CLT с искусственным поверхностным диэлектрическим слоем.

Диэлектрический слой – пленка  $\text{SiO}_2$  толщиной 300 нм была нанесена на Z+ поверхность. Наносились прозрачные электроды из ИТО: круглые на Z+ поверхность, и сплошные – на Z-. Переключение производилось прямоугольными импульсами поля с амплитудой от 5 до 11 кВ/мм при температуре 250 °С.

Подобные дендритные домены образуются в CLN и CLT (Рисунок 13). Подробные исследования в CLN позволили выделить три типа форм: (1) «звезды» с тремя основными ветвями (Рисунок 14), (2) «снежинки» с шестью основными ветвями (Рисунок 15), (3) «дендритные снежинки» с шестью секторами (Рисунок 16).

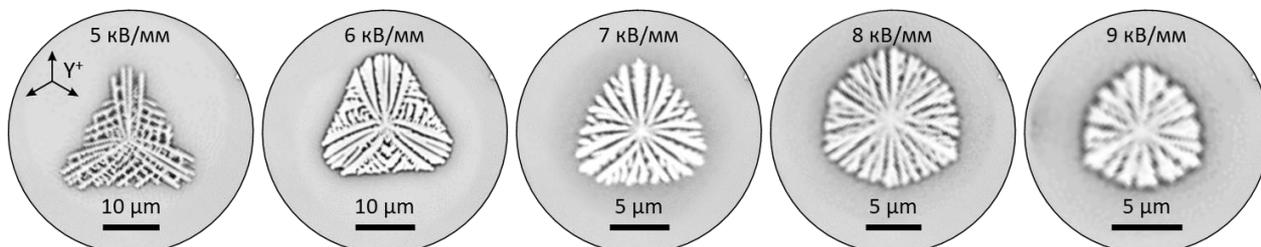


Рисунок 13 – Статические изображения дендритных доменов в CLT в поле различной амплитуды. Оптика, фазовый контраст.

**Звезды** формируются в слабых полях, при этом из одного центра растут три луча в  $Y^+$  направлениях (Рисунок 14). Анизотропный рост лучей в LN был объяснен в рамках кинетического подхода [27]. При увеличении поля на лучах формируются ветви, растущие в  $Y^+$  направлениях (ветвление) (Рисунок). Рост в  $Y^+$  направлениях обусловлен тем, что пороговое поле для роста в  $Y^-$  направлениях больше, чем в  $Y^+$ . Редкие расщепления растущих лучей не оказывают существенного влияния на форму дендритной структуры.

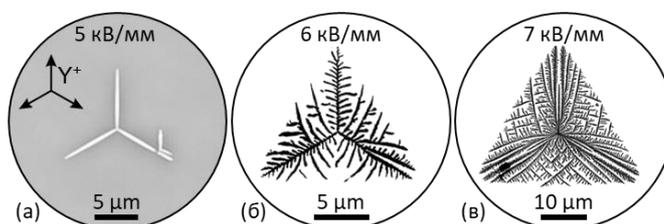


Рисунок 14 – Статические изображения дендритных доменов – тип формы «звезды». (а) Оптика, фазовый контраст. (б) СЭМ.

**Снежинки** образуются в средних полях (Рисунок 15). В этом случае расщепление трех лучей приводит к формированию шести лучей. Последующее ветвление приводит к образованию формы, подобной настоящим снежинкам [28].

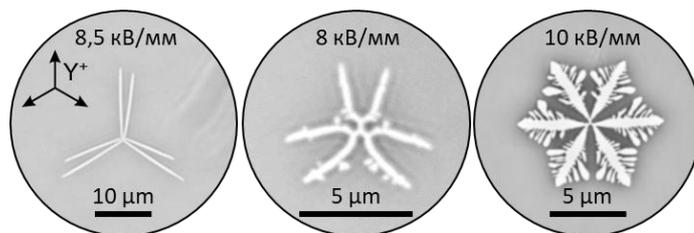


Рисунок 15 – Изображения дендритных доменов – тип формы «снежинки». Оптика, фазовый контраст.

**Дендритные снежинки**, образуются в сильных полях, имеют более сложную структуру, разделенную на сектора. На начальной стадии формируется сплошной домен микронных размеров (Рисунок 16), из которого в  $Y^+$  и  $Y^-$  направлениях растут параллельные лучи шириной 300 нм и периодом 500 нм (Рисунок 17а).

Анизотропия роста приводит к формированию секторов с разными сценариями роста: трех «узких» - с углами  $< 60$  градусов и трех «широких» - с углами  $> 60$  градусов (Рисунок 17б).

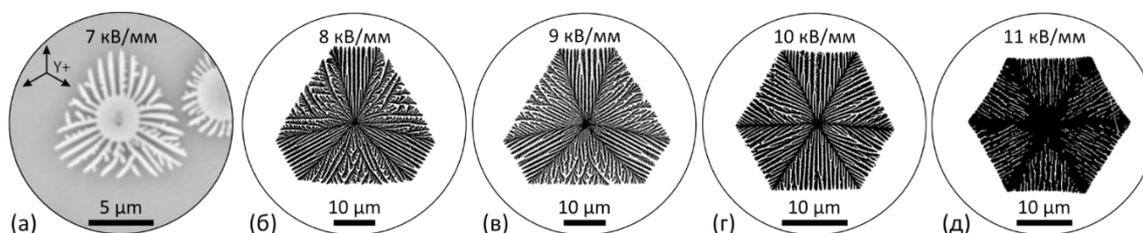


Рисунок 16 – Статические изображения дендритных снежинок в поле различной амплитуды. (а) Оптика, фазовый контраст. (б)-(д) СЭМ. (е) Полевая зависимость угла между стволами в узком и широком секторах.

В узких секторах лучи с плоскими доменными стенками растут в  $Y^+$  направлениях без изменения периода (Рисунок 17а). Увеличение расстояния между соседними стенками, вызванное прекращением роста отдельных лучей, приводит к образованию ветвей с волнистыми стенками (Рисунок 22в), а прекращение роста этих ветвей открывает возможность для роста доменных пальцев (Рисунок 17а). Взаимодействие сближающихся стенок соседних ветвей ограничивает их расширение и домены растут только за счет удлинения ветвей (Рисунок 17а).

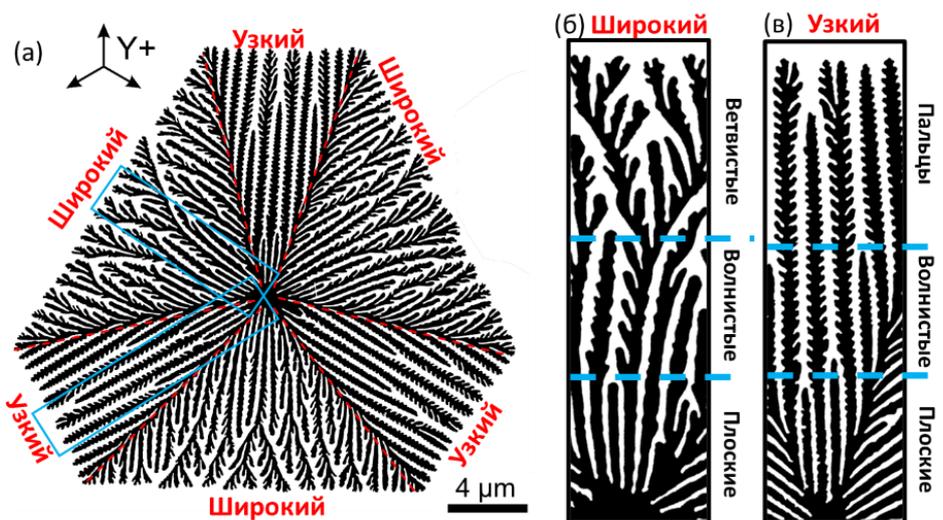


Рисунок 17 – (а) СЭМ бинаризованное изображение домена после переключения в поле 8 кВ/мм. (б,в) Увеличенные фрагменты ДС (синий прямоугольник (а)).

В широких секторах лучи растут в  $Y^-$  направлении. Стремление изменить направление роста на  $Y^+$  приводит к более эффективному прекращению роста соседних ветвей и значительному увеличению расстояния между ветвями, растущими в  $Y^+$  направлении (Рисунок 17а).

**In situ** оптическая визуализация позволила подтвердить, что формирование дендритных снежинок происходит в основном за счет ветвления (Рисунок 18).

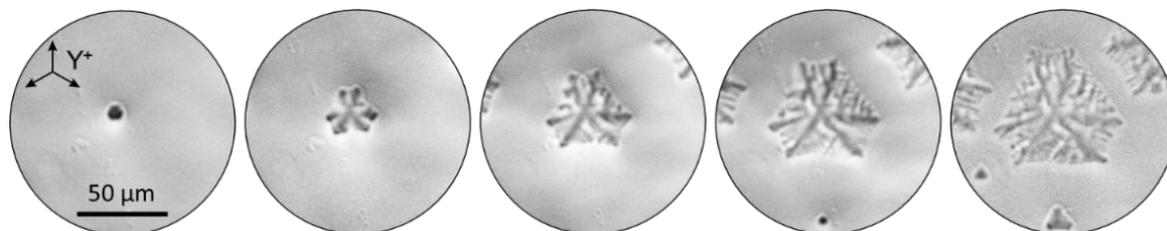


Рисунок 18 – *In situ* визуализация роста дендритного домена в CLN в поле 7 кВ/мм при длительности импульса 10 с. Интервал между кадрами 2 с. Оптика в режиме проходящего света.

При прорастании домена на  $Z^-$  полярную поверхность формировались дендритные структуры, что свидетельствовало о наличии диэлектрического слоя, образовавшегося при нанесении ITO электрода (Рисунок 19). МГВГ визуализация домена в объеме (Рисунок 20) показала, что дендритная ДС существует только в приповерхностных слоях, а в глубине растет единый домен в форме призмы.

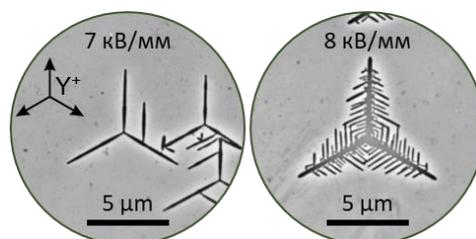


Рисунок 19 – Дендритные домены на  $Z^-$  поверхности. Оптика, фазовый контраст

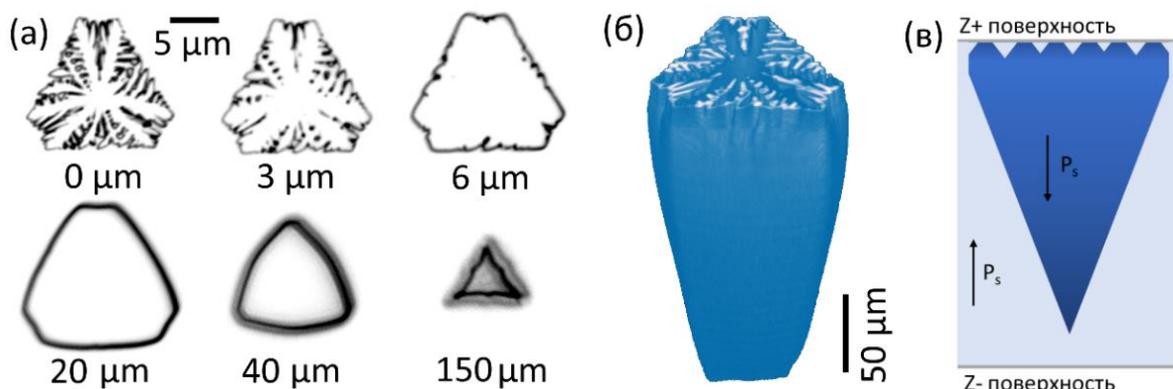


Рисунок 20 – МГВГ визуализация дендритной ДС в объеме: (а) срез структуры на разной глубине от  $Z^+$  поверхности, (б) трехмерное изображение. (в) Схема домена.

Формирование дендритных доменов можно объяснить в рамках кинетического подхода как результат движения доменных стенок в условиях неэффективного экранирования, вызванного наличием поверхностного диэлектрического слоя, который увеличивает остаточное деполяризующее поле  $E_{rd}$ .

Полярная компонента локального поля ( $E_{loc.z}$ ) содержит вклады: (1) внешнего поля ( $E_{ex}$ ), создаваемого приложенным напряжением, (2) деполяризующего поля ( $E_{dep}$ ), создаваемого связанными зарядами и зависящего от размера и формы домена, (3) поля внешнего экранирования ( $E_{ex.scr}$ ), образующегося за счет перераспределения заряда на электродах, (4) поля объемного экранирования ( $E_b$ ), образующегося за счет медленных объемных процессов [29, 30].

$$E_{loc.z}(r, t) = E_{ex.z} - E_{rd.z}(r, t) - E_{b.z}(r, t) \quad (8)$$

где  $E_{rd.z}(r, t) = E_{dep.z}(r, t) - E_{ex.scr.z}(r, t)$  – остаточное деполяризующее поле.

Движение доменной стенки обусловлено генерацией ступеней на стенке и движением кинков вдоль стенки [27]. Скорость генерации ступеней определяется превышением  $E_{loc.z}$  над пороговым значением для генерации ступеней  $E_{th.st}$

$$dn_s/dt(E) = k (E_{loc.z} - E_{th.st}) \quad (9)$$

где  $n_s$  – концентрация ступеней.

Скорость движения кинков определяется превышением  $E_{loc.z}$  над пороговым значением для движения кинков  $E_{th.k}$

$$v_k(E) = \mu_k (E_{loc.z} - E_{th.k}) \quad (10)$$

где  $\mu_k$  – подвижность кинков.

В сегнетоэлектрике с диэлектрическим слоем и сплошными электродами  $E_{rd.z}$  пропорционально отношению толщины слоя  $L$  к толщине образца  $d$  [29, 30].

$$E_{rd.z} = 2P_s L / \epsilon_L \epsilon_0 d \quad (11)$$

где  $\epsilon_L$  и  $\epsilon_0$  – диэлектрические проницаемости слоя и вакуума.

Наличие  $E_{rd.z}$  замедляет движение доменных стенок. Зависимость  $E_{loc.z}$  от формы домена приводит к удлинению полосовых доменов без изменения ширины. Электростатическое взаимодействие полосовых доменов препятствует их слиянию.

Компьютерное моделирование распределения поля на поверхности (Рисунок 21а), превышения поля над порогом (Рисунок 21б) на доменной стенке и изменения формы движущейся стенки (Рисунок 21в) показало, что существование одиночных выступов или впадин на стенке приводит к формированию чередующихся изменений формы. Взаимодействие стенок соседних доменов ограничивает длину выступов на стенках (Рисунок 21г) и приводит к образованию волнистых стенок и квазирегулярных доменных пальцев («fingering») [31]. Уменьшение поля во впадинах ниже порога (Рисунок 21б) обеспечивает существование устойчивых вогнутых углов

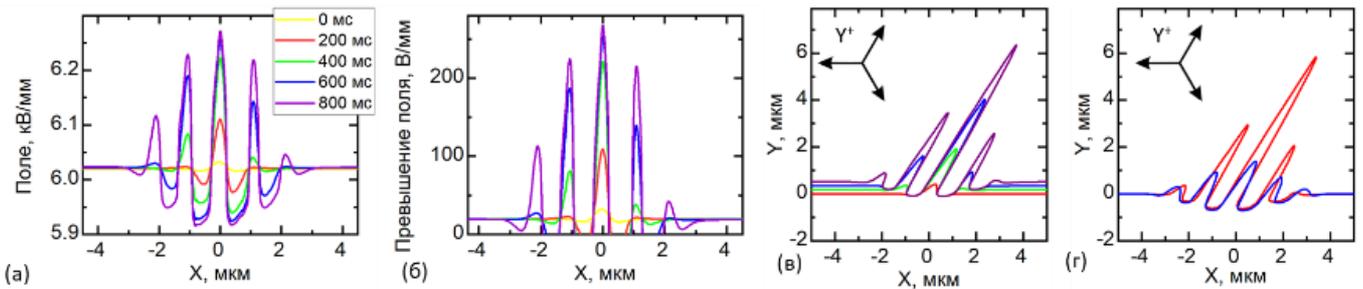


Рисунок 21 – Компьютерное моделирование изменения формы движущейся доменной стенки с одиночным выступом: (а) распределение поля на стенке, (б) превышение поля над порогом, (в) изменение формы стенки, (г) учет взаимодействия сближающихся стенок (синяя линия).

Ориентация пальцев и растущих ветвей в  $Y$  направлениях обусловлена анизотропией скоростей роста. Меньшие пороговые поля для роста в  $Y+$  направлениях приводят к преобладанию  $Y+$  ветвей в слабых полях. В сильных полях рост в  $Y-$  направлениях медленнее, чем в  $Y+$ , что при увеличении размера домена приводит к преимущественному росту ветвей в  $Y+$  направлениях в широких секторах (Рисунок 17).

Расчет пространственного распределения  $E_{loc.z}$  в объеме показал, что оно увеличивается с глубиной, что приводит к генерации ступеней на стенке и расширению ветвей в объеме (Рисунок 22а). Этот факт приводит к существованию дендритной ДС

только вблизи поверхности и образованию единого домена в глубине (Рисунок 20).

**Формирование самоупорядоченных ДС за пределами электрода** обнаружено в CLN в градиентном поле за пределами электрода. В полях  $<10$  кВ/мм за краем электрода вдоль  $Y+$  направлений растут нанодоменные лучи длиной до 30 мкм (Рисунок 22). Период структур зависит от поля и толщины диэлектрического зазора и изменяется в пределах от 200 нм до 1 мкм. Ширина нанодоменных лучей составляет от 80 до 400 нм. Самоорганизованный рост квазирегулярных полосовых нано-ДС с рекордно малыми субмикронными периодами представляет интерес для развития методов доменной инженерии.

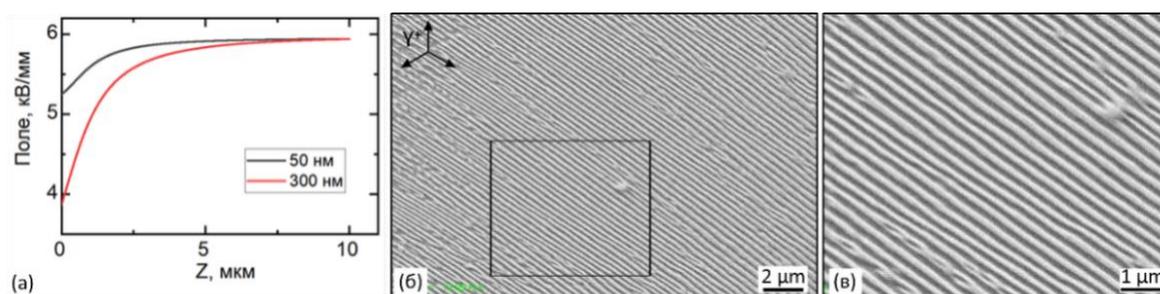


Рисунок 22 – (а) Компьютерное моделирование распределения поля на доменной стенке с глубиной для разной толщины диэлектрического зазора. (б, в) Квазирегулярная нано-ДС. СЭМ.

## ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ РАБОТЫ

Систематические исследования переключения поляризации, кинетики ДС и формирования дендритных доменов в монокристаллах семейства танталата лития и ниобата лития, позволили сделать следующие основные выводы:

1. В NCLT и MgOSLT выявлена определяющая роль в процессе переключения макроскопических доменных стенок, движущихся от края электрода за счет слияния с изолированными доменами. В MgOSLT слияние шестиугольных доменов большой площади приводит к скачкообразному ускорению переключения.

2. Показано, что в LT сильное легирование MgO приводит к значительному уменьшению коэрцитивного поля, плавному движению доменных стенок и увеличению скорости переключения за счет образования остаточных доменов при циклическом переключении.

3. Впервые обнаруженное формирование квазирегулярных полосовых доменов субмикронной ширины в MgOSLT при переключении с металлическими электродами (Cr) отнесено за счет образования при нанесении электрода поверхностного слоя с повышенной концентрацией кислородных вакансий. Определяющая роль поверхностного слоя проявляется при формировании заряженной доменной стенки в NCLT, покрытом слоем фоторезиста.

4. Впервые обнаружено и изучено формирование дендритных доменов при переключении поляризации при повышенных температурах в CLN и CLT с искусственным диэлектрическим слоем. Подробные исследования в CLN позволили выделить три типа форм дендритных доменов и изучить особенности их формирования. *In situ* визуализацией подтверждено, что дендритные домены растут при приложении поля за счет ветвления.

5. Формирование дендритных доменов объяснено в рамках кинетического подхода,

как результат движения доменных стенок при неэффективном экранировании. Возникающее остаточное деполяризующее поле зависит от формы доменов и неоднородно замедляет движение доменных стенок. Компьютерным моделированием объяснено образование волнистых стенок и квазирегулярных доменных пальцев.

6. Увеличение локального поля с глубиной приводит к расширению ветвей дендритов, вызывающему образованию дендритной ДС в приповерхностном слое толщиной в несколько микрометров и рост единого домена в глубине.

7. Выявленные особенности кинетики ДС позволили оптимизировать технологию создания РДС в MgOSLT и MgOCLT для изменения длины волны методом генерации второй гармоники с использованием эффекта фазового квазисинхронизма. При непрерывной генерации без резонатора получена выходная мощность 15 Вт.

#### **Перспективы дальнейшей разработки темы**

Полученные в ходе выполнения работы результаты будут использованы для дальнейшего развития методов доменной инженерии для изготовления преобразователей длины волны лазерного излучения в кристаллах LT и LN, легированных MgO, с РДС. Будут проведены дальнейшие исследования формирования дендритных доменов после сквозного прорастания и в кристаллах LT. Будут изучены особенности формирования самоорганизованных и дендритных структур в тонких монокристаллических пленках LN на изолирующей подложке, полученных методом ионного скола.

#### **ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА**

1. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric / J.A. Armstrong [et al.] // *Physical Review*. – 1962. – Vol. 127. – № 6. – P. 1918-1939.
2. Hum, D.S. Quasi-phasesmatching / D.S. Hum, M.M. Fejer // *Comptes Rendus Physique*. – 2007. – Vol. 8. – № 2. – P. 180-198.
3. Tailored domain patterns in piezoelectric crystals / R.E. Newnham [et al.] // *Physica Status Solidi (a)*. – 1975. – Vol. 32. – № 1. – P. 69-78.
4. Domain wall nanoelectronics / G. Catalan [et al.] // *Reviews of Modern Physics*. – 2012. – Vol. 84. – № 1. – P. 119-156.
5. Toward Ferroelectric Control of Monolayer MoS<sub>2</sub> / A. Nguyen [et al.] // *Nano Letters*. – 2015. – Vol. 15. – № 5. – P. 3364-3369.
6. Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances / M.M. Fejer [et al.] // *IEEE Journal of Quantum Electronics*. – 1992. – Vol. 28. – № 11. – P. 2631-2654.
7. Shur, V.Ya. Domain Nanotechnology in Lithium Niobate and Lithium Tantalate Crystals / V.Ya. Shur // *Ferroelectrics*. – 2010. – Vol. 399. – № 762905488. – P. 97-106.
8. Shur, V.Ya. Kinetics of ferroelectric domains: Application of general approach to LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub> / V.Ya. Shur // *Journal of Materials Science*. – 2006. – Vol. 41. – № 1. – P. 199-210.
9. Shur, V.Ya. Micro- and nano-domain engineering in lithium niobate / V.Ya. Shur, A.R. Akhmatkhanov, I.S. Baturin // *Applied Physics Reviews*. – 2015. – Vol. 2. – № 4. – P. 1-22.
10. Tian, L. Domain reversal in stoichiometric LiTaO<sub>3</sub> prepared by vapor transport equilibration / L. Tian, V. Gopalan, L. Galambos // *Applied Physics Letters*. – 2004. – Vol. 85. – № 19. – P. 4445.
11. Domain Shape in Congruent and Stoichiometric Lithium Tantalate / V.Ya. Shur [et al.] // *Ferroelectrics*. – 2002. – Vol. 269. – № 1. – P. 195-200.
12. Optical properties and ferroelectric engineering of vapor-transport-equilibrated, near-stoichiometric lithium tantalate for frequency conversion / D.S. Hum [et al.] // *Journal of Applied Physics*. – 2007. – Vol. 101. – № 9. – P. 093108.
13. Gopalan, V. In situ video observation of 180° domain switching in LiTaO<sub>3</sub> by electro-optic imaging microscopy / V. Gopalan, T.E. Mitchell // *Journal of Applied Physics*. – 1999. – Vol. 85.

- № 4. – P. 2304-2311.
14. Light-mediated ferroelectric domain engineering and micro-structuring of lithium niobate crystals / C.Y.J. Ying [et al.] // *Laser & Photonics Reviews*. – 2012. – Vol. 6. – № 4. – P. 526-548.
  15. Ordered nano-scale domains in lithium niobate single crystals via phase-mask assisted all-optical poling / I.T. Wellington [et al.] // *Applied Surface Science*. – 2007. – Vol. 253. – № 9. – P. 4215-4219.
  16. Raman visualization of micro- and nanoscale domain structures in lithium niobate / P.S. Zelenovskiy [et al.] // *Applied Physics A: Materials Science and Processing*. – 2010. – Vol. 99. – № 4. – P. 741-744.
  17. Kurimura, S. Application of the second harmonic generation microscope to nondestructive observation of periodically poled ferroelectric domains in quasi-phase-matched wavelength converters / S. Kurimura, Y. Uesu // *Journal of Applied Physics*. – 1997. – Vol. 81. – № 1. – P. 369-375.
  18. Shur, V.Ya. Analysis of the switching current data in uniaxial ferroelectrics / V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, E. V. Shishkina // *Ferroelectrics*. – 2013. – Vol. 443. – № 1. – P. 105-115.
  19. Domain Kinetics in Lithium Niobate Single Crystals with Photoresist Dielectric Layer / A.R. Akhmatkhanov [et al.] // *Ferroelectrics*. – 2012. – Vol. 439. – № 1. – P. 3-12.
  20. Shur, V. Kinetics of phase transformations in real finite systems: Application to switching in ferroelectrics / V. Shur, E. Rumyantsev, S. Makarov // *Journal of Applied Physics*. – 1998. – Vol. 84. – № 1. – P. 445-451.
  21. Complex study of bulk screening processes in single crystals of lithium niobate and lithium tantalate family / V.Ya. Shur [et al.] // *Physics of the Solid State*. – 2010. – Vol. 52. – № 10. – P. 2147-2153.
  22. Polarization reversal and jump-like domain wall motion in stoichiometric LiTaO<sub>3</sub> produced by vapor transport equilibration / V.Ya. Shur [et al.] // *Journal of Applied Physics*. – 2012. – Vol. 111. – № 1. – P. 014101.
  23. Gopalan, V. Observation of internal field in LiTaO<sub>3</sub> single crystals: Its origin and time-temperature dependence / V. Gopalan, M.C. Gupta // *Applied Physics Letters*. – 1996. – Vol. 68. – № 7. – P. 888-890.
  24. Shape of isolated domains in lithium tantalate single crystals at elevated temperatures / V.Ya. Shur [et al.] // *Applied Physics Letters*. – 2013. – Vol. 103. – № 24. – P. 242903.
  25. Ultraviolet laser induced domain inversion on chromium coated lithium niobate crystals / A. Boes [et al.] // *Optical Materials Express*. – 2014. – Vol. 4. – № 2. – P. 241-254.
  26. Formation and evolution of charged domain walls in congruent lithium niobate / V.Y. Shur [et al.] // *Applied Physics Letters*. – 2000. – Vol. 77. – № 22. – P. 3636-3638.
  27. Shur, V.Ya. Domain shapes in bulk uniaxial ferroelectrics / V.Ya. Shur, E. V. Pelegova, M.S. Kosobokov // *Ferroelectrics*. – 2020. – Vol. 569. – № 1. – P. 251-265.
  28. Libbrecht K.G. Physical Dynamics of Ice Crystal Growth / K.G. Libbrecht // *Annual Review of Materials Research*. – 2017. – Vol. 47. – № 1. – P. 271-295.
  29. Shur, V.Ya. Nano- and micro-domain engineering in normal and relaxor ferroelectrics / V.Ya. Shur // *Handbook of Advanced Dielectric, Piezoelectric and Ferroelectric Materials*. – Elsevier, 2008. – P. 622-669.
  30. Shur, V.Ya. Fast Polarization Reversal Process : Evolution of Ferroelectric Domain Structure in Thin Films / V.Ya. Shur // *Ferroelectric thin film: synthesis and basic properties* / eds. C.A.P. de Araujo, J.F. Scott, G.W. Taylor. – Gordon and Breach Science Publ., 1996. – P. 153-192.
  31. Self-assembled shape evolution of the domain wall and formation of nanodomain wall traces induced by multiple IR laser pulse irradiation in lithium niobate / V.Y. Shur [et al.] // *Journal of Applied Physics*. – 2020. – Vol. 127. – № 9. – P. 094103.

## СПИСОК ОСНОВНЫХ ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи в ведущих рецензируемых научных журналах, индексируемых международными базами цитирований, рекомендованных ВАК РФ и Аттестационным советом УрФУ:

1. Shur V.Ya. Polarization reversal and domain kinetics in magnesium doped stoichiometric lithium tantalate / V.Ya. Shur, A.R. Akhmatkhanov, **M.A. Chuvakova**, I. S. Baturin // Applied Physics Letters. – 2014. – Vol. 105. – №15. – P. 152905-1-5. – 0,58 п.л./ 0,14 п.л. – (Scopus, Web of Science).
2. Akhmatkhanov A.R. Formation of self-assembled domain structures in MgOSLT / A.R. Akhmatkhanov, **M.A. Chuvakova**, I.S. Baturin, V.Ya. Shur // Ferroelectrics. – 2015. – Vol. 476. – №1. – P. 76–83. 0,93 п.л./ 0,23 п.л. – (Scopus, Web of Science).
3. Akhmatkhanov A.R. Polarization reversal process in MgO doped congruent lithium tantalate single crystals / A.R. Akhmatkhanov, **M.A. Chuvakova**, E.M. Vaskina, V.Ya. Shur // Ferroelectrics. – 2015. – Vol. 476. – № 1. – P. 57–68. – 1,28 п.л./ 0,32 п.л. – (Scopus, Web of Science).
4. Chuvakova M.A. Formation of self-assembled domain structures in single crystals of lithium tantalate with artificial dielectric layer / **M.A. Chuvakova**, E.M. Vaskina, A.R. Akhmatkhanov, I.S. Baturin, V.Ya. Shur // Ferroelectrics. – 2016. – Vol. 496. – № 1. – P. 92–101. – 1,04 п.л./ 0,21 п.л. – (Scopus, Web of Science).
5. Shur V.Ya. Periodically poled MgO doped LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub> for coherent light frequency conversion / V.Ya. Shur, A.R. Akhmatkhanov, I.S. Baturin, **M.A. Chuvakova**, A.A. Esin // 2016 International Conference Laser Optics (LO). – 2016. – P. S1-16. – 0,12 п.л./ 0,02 п.л. – (Scopus, Web of Science).
6. Andreeva M.S. Optical parametric oscillator based on the periodically poled MgO:LN crystal with 4.1 μm wavelength and varied pulse duration / M.S. Andreeva, N.P. Andreeva, M.S. Barashkov, K.V. Mitin, N.I. Shchebetova, M.I. Krymskii, K.M. Krymskii, V.E. Rogalin, A.R. Akhmatkhanov, **M.A. Chuvakova**, V.Ya. Shur // Ferroelectrics. – 2016. – Vol. 496. – № 1. – P.128-133. – 0,58 п.л./ 0,05 п.л. – (Scopus, Web of Science).
7. Akhmatkhanov A.R. The phase-field modeling of the self-organized phase growth with three-fold symmetry / A.R. Akhmatkhanov, A.I. Lobov, **M.A. Chuvakova**, E.D. Saveliev, V.Ya. Shur // IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. – 2017. – Vol. 256. – № 1. – P. 012027. – 0,37 п.л./ 0,07 п.л. – (Scopus, Web of Science).
8. Chuvakova M.A. The bulk screening field in nonstoichiometric lithium tantalate single crystals / **M.A. Chuvakova**, A.R. Akhmatkhanov, I.S. Baturin, V.Ya. Shur // Ferroelectrics, – 2019. – Vol. 541. № 1. – P. 30-38. – 0,5 п.л./ 0,12 п.л. – (Scopus, Web of Science).
9. Shur V.Ya. Periodically poled MgO:LiNbO<sub>3</sub>, MgO:LiTaO<sub>3</sub> and KTiOPO<sub>4</sub> crystals for laser light frequency conversion / V.Ya. Shur, A.R. Akhmatkhanov, **M.A. Chuvakova**, A.A. Esin, O.L. Antipov, A.A. Boyko, D.B. Kolker // 2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference. – 2019. – P. 8871519. – 0,13 п.л./ 0,03 п.л. – (Scopus, Web of Science).
10. Akhmatkhanov A.R. Domain splitting in lithium niobate with surface dielectric layer / A.R. Akhmatkhanov, **M.A. Chuvakova**, M.S. Nebogatikov, Ya.V. Shaydurov, V.Ya. Shur // Ferroelectrics – 2020. – Vol. 559. – № 1. – P.8-14. – 0,5 п.л./ 0,16 п.л. – (Scopus, Web of Science).