

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение  
высшего образования «Уральский федеральный университет  
имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»  
Институт естественных наук и математики  
Кафедра физики конденсированного состояния и наноразмерных систем

На правах рукописи

СЛАУТИН Борис Николаевич

ИССЛЕДОВАНИЕ РАЗМЕРНЫХ ЭФФЕКТОВ И ЭВОЛЮЦИИ  
ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ ПРИ ЛОКАЛЬНОМ  
ПЕРЕКЛЮЧЕНИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ  
В КРИСТАЛЛАХ НИОБАТА ЛИТИЯ

1.3.8. Физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

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

Екатеринбург – 2022

**Оглавление**

Введение .....	5
Глава 1. Литературный обзор .....	13
1.1 Сегнетоэлектрики. Основные свойства и применение. ....	13
1.2 Переключение поляризации под действием внешнего электрического поля .....	15
1.3 Размерные эффекты в сегнетоэлектриках .....	19
1.4 Ниобат лития .....	20
1.4.1 Структура и основные свойства .....	20
1.4.2 Доменная структура .....	22
1.4.3. Ниобат лития на изоляторе .....	23
1.5 Сканирующая зондовая микроскопия как метод исследования доменной структуры сегнетоэлектриков .....	25
1.5.1 Атомно-силовая микроскопия .....	26
1.5.2 Силовая микроскопия пьезоэлектрического отклика .....	27
1.5.3 Локальное переключение поляризации .....	29
1.5.4 Прямое прораствание доменов .....	34
1.6 Квазифазовый синхронизм .....	35
1.6.1 Нелинейные оптические эффекты в диэлектриках .....	35
1.6.2 Регулярная доменная структура .....	38
1.7 Метод каналирования электронов .....	39
1.7 Краткие выводы .....	42
Глава 2. Исследуемые образцы, экспериментальные установки и методики экспериментов .....	43
2.1 Исследуемые образцы .....	43
2.1.1 Ниобат лития на изоляторе .....	43

2.1.2 Монокристаллы ниобата лития .....	44
2.2 Экспериментальные установки .....	45
2.2.1 Сканирующая зондовая микроскопия .....	45
2.2.2 Сканирующая электронная микроскопия .....	46
2.3 Методики экспериментов .....	46
2.3.1. Методы сканирующей зондовой микроскопии .....	46
2.3.2. Методика создания полосовых электродов .....	48
2.3.3. Расчеты методом конечных элементов .....	49
2.4 Краткие выводы .....	49
Глава 3. Рост доменов при локальном переключении поляризации на полярных срезах.....	50
3.1. Рост и изменение формы доменов .....	50
3.1.1. Тонкие пластины .....	50
3.1.2. Пленки в LNOI с электродом. ....	52
3.1.3. Пленки в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом .....	53
3.1.4. Механизмы роста доменов .....	55
3.2. Влияние влажности на рост доменов.....	57
3.3. Взаимодействие и стабильность доменов .....	60
3.4. Краткие выводы .....	62
Глава 4. Особенности эволюции изолированных доменов при локальном переключении поляризации на неполярных срезах монокристаллических пластин и тонких пленок ниобата лития .....	64
4.1. Форма и механизм роста доменов.....	64
4.1.1. Пластины LN, вырезанные параллельно полярной оси.....	64
4.1.2. Тонкие пленки в LNOI .....	65

4.1.3. Механизм роста .....	66
4.2. Влияние влажности на рост доменов.....	69
4.3. Переключение к электроду в пленках в LNOI.....	70
4.4. Самоорганизация в доменных структурах .....	72
4.5. Краткие выводы .....	74
Глава 5. Формирование регулярных полосовых доменных структур при переключении поляризации зондом сканирующего зондового микроскопа в тонких пленках ниобата лития. ....	
5.1. Создание регулярных доменных структур в пленках в LNOI с полярной ориентацией и электродом. ....	76
5.1.1 Полосовые домены .....	76
5.1.2 Регулярные доменные структуры .....	77
5.1.2 Взаимодействие между полосовыми доменами .....	78
5.1.3 Стабильность регулярных доменных структур.....	81
5.2. Создание регулярных доменных структур в пленках в LNOI с полярной ориентацией, диэлектрическим слоем и электродом.....	82
5.2.1 Полосовые домены .....	82
5.2.2 Регулярные доменные структуры .....	84
5.3. Создание регулярных доменных структур в пленках LNOI с неполярной ориентацией. ....	85
5.4. Краткие выводы.....	86
Заключение.....	88
Благодарности .....	90
Список условных обозначений .....	91
Список литературы.....	94
Список публикаций по теме диссертации.....	108

## Введение

### Актуальность темы исследования

Ниобат лития  $\text{LiNbO}_3$  (LN) является одним из наиболее широко используемых сегнетоэлектриков, так как обладает уникальным набором пьезоэлектрических, пьезоэлектрических, электрооптических и нелинейно-оптических свойств, а также имеет широкое окно пропускания в видимой части спектра, что обеспечивает его применение в фотонике и нелинейной оптике [1]. Создание в кристаллах стабильных регулярных доменных структур (РДС) с воспроизводимостью периода порядка 20 нм позволяет реализовать условие фазового квази-синхронизма [2], что обеспечивает генерацию второй гармоники и параметрическую генерацию света с рекордной эффективностью [3]. Кристаллы LN с РДС получили широкое распространение для создания преобразователей длины волны излучения [4]. Важно отметить, что создание периодически поляризованного LN с субмикронными периодами позволит реализовать параметрическую генерацию света обратной волны [5]. В последние годы удалось методом температурного скола после ионной имплантации («ion-slicing») получить субмикронные монокристаллические пленки LN на изолирующей подложке с подслоем  $\text{SiO}_2$  (LNOI) [6]. Большая разница показателей преломления в LN и  $\text{SiO}_2$  делает LNOI перспективной структурой для использования в микрофотонике и интегральной оптике [7]. На основе LNOI созданы прототипы высокоэффективных волноводов, высокоскоростных электро- и акустооптических модуляторов, кольцевых и дисковых оптических резонаторов, нелинейных преобразователей длины волны излучения [7,8].

Широкие перспективы применения тонких пленок LN, а также высокие требования к однородности доменной структуры требуют изучения влияния размерного эффекта на кинетику доменов. Поэтому детальное исследование особенностей кинетики доменной структуры в тонких пленках LN имеет важное значение для развития методов доменной инженерии и создания РДС в тонких пленках LN.

### **Степень разработанности темы исследования**

Исследование влияния уменьшения толщины образца на свойства сегнетоэлектриков в тонких поликристаллических пленках [9] позволило выявить значительное уменьшение диэлектрической проницаемости, спонтанной поляризации и пьезоэлектрического коэффициента [10].

Для создания РДС в тонких пленках LN обычно используют металлические электроды на полярной поверхности или встречно-штыревые электроды в пленках с неполярной ориентацией [11]. Продемонстрирована возможность создания РДС с периодами вплоть до 600 нм в волноводе, изготовленном на базе LNOI [12]. Для дальнейшего уменьшения периодов и улучшения однородности параметров РДС требуется детальное исследование кинетики доменов в пленках LN.

Показано, что локальное переключение поляризации методами сканирующей зондовой микроскопии (СЗМ) позволяет создавать полосовые домены в пленках в LNOI [13]. Однако результаты предварительных исследований роста и стабильности создаваемых доменов во многом противоречивы, что делает актуальным детальное комплексное исследование эволюции доменных структур в тонких пленках LN при локальном переключении.

**Цель работы** – исследование особенностей эволюции изолированных доменов и формирования доменных структур при локальном переключении поляризации с помощью зонда сканирующего зондового микроскопа в тонких пленках LN, а также создание стабильных регулярных доменных структур с субмикронными периодами.

#### **Основные задачи:**

1. Исследовать эволюцию изолированных доменов при локальном переключении в тонких монокристаллических пластинах и тонких пленках ниобата лития с полярной ориентацией.
2. Изучить влияние влажности на кинетику роста и форму доменов, образующихся при локальном переключении в тонких

монокристаллических пластинах и тонких пленках ниобата лития с полярной ориентацией.

3. Исследовать формирование изолированных клиновидных и гребенчатых доменов при локальном переключении в монокристаллических пластинах и тонких пленках ниобата лития с неполярной ориентацией.
4. Изучить переход между основными стадиями эволюции доменной структуры в процессе переключения от прямого прорастания к боковому движению доменных стенок на примере роста изолированного клиновидного домена к полосовому заземленному электроду в тонких пленках ниобата лития с неполярной ориентацией.
5. Разработать методы создания регулярных стабильных полосовых регулярных доменных структур с субмикронными периодами в тонких пленках ниобата лития.

#### **Объекты исследования.**

Исследовалась эволюция изолированных доменов, а также формирование РДС в пластинах ниобата лития толщиной 500 и 20 мкм и в пленках толщиной 300 и 700 нм в LNOI с полярной и неполярной ориентацией. Изучались два типа LNOI с полярной ориентацией: 1) с электродом, 2) с диэлектрическим слоем и электродом.

#### **Научная новизна** работы заключается в следующем:

1. Впервые проведено комплексное исследование формирования и роста изолированных доменов при локальном переключении в монокристаллических пленках LN с полярной ориентацией и выявлены отличия в кинетике и форме доменов на поверхности и в объеме от результатов локального переключения на полярных срезах в пластинах LN.
2. Впервые выявлен механизм роста изолированных доменов за счет коррелированного зародышеобразования при локальном переключении в пленках LN с искусственным диэлектрическим слоем.
3. Впервые обнаруженные эффекты: ускорение роста доменов в пленках LN и замедление роста в пластинах LN и в пленках LN с диэлектрическим слоем

при увеличении относительной влажности, объяснены за счет делокализации поля, вызванной образованием водного мениска в точке контакта зонд-образец.

4. Впервые обнаруженные качественные различия между формой и кинетикой роста изолированных доменов в монокристаллических пленках и пластинах LN с неполярной ориентацией отнесены за счет повышенной объемной проводимости, вызванной облучением ионами при создании пленок.
5. Обнаружен и объяснен эффект самоорганизованного формирования гребневых доменов с упорядоченным чередованием длины зубцов и кратным увеличением пространственного периода до восьми раз при сканировании проводящим зондом СЗМ с постоянным напряжением в пленках LN с неполярной ориентацией.
6. Впервые разработаны методы локального переключения проводящим зондом СЗМ, позволившие создать стабильные регулярные структуры полосовых доменов с периодами до 200 нм, в пленках LN с полярной и неполярной ориентацией.

#### **Теоретическая значимость проведенных исследований.**

1. Впервые выявленный аномальный рост изолированных доменов при локальном переключении в пленках LN с искусственным диэлектрическим слоем отнесен за счет коррелированного зародышеобразования.
2. Наблюдаемое различие влияния относительной влажности на кинетику роста доменов в пластинах и тонких пленках ниобата лития объяснено делокализацией электрического поля, вызванной образованием водного мениска в точке контакта зонд-образец.
3. Формирование заряженных доменных стенок с аномально большим отклонением от полярного направления в тонких пленках объяснено за счет эффективного объемного экранирования, вызванного повышенной объемной проводимостью пленок, созданных методом ионного скола.

#### **Практическая значимость проведенных исследований**

1. Выявленные закономерности роста и взаимодействия изолированных



доменов в тонких пленках ниобата лития представляют интерес для развития методов доменной инженерии с использованием локального переключения зондом СЗМ.

2. Обнаруженный эффект самоорганизованного формирования квазирегулярных доменных структур с периодом до 100 нм в тонких монокристаллических пленках ниобата лития с неполярной ориентацией может быть использован для развития методов инженерии доменных стенок.
3. Продемонстрированная возможность создания при помощи локального переключения регулярных доменных структур в тонких монокристаллических пленках ниобата лития с периодами до 200 нм представляет значительный интерес для создания нелинейно-оптических устройств.

#### **Методология и методы исследования.**

Систематические экспериментальные исследования доменной структуры проводились с использованием современного высокоточного аналитического оборудования. Для создания изолированных доменов и доменных структур использовались методы локального переключения поляризации зондом сканирующего зондового микроскопа. Визуализация доменных структур производилась при помощи силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика и сканирующей электронной микроскопии. Моделирование влияния влажности на рост и моделирование взаимодействия доменов было осуществлено с помощью программного пакета COMSOL Multiphysics. Все измерения проводились в атмосфере азота с контролем относительной влажности и температуры.

**Достоверность полученных результатов** 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. Достоверность расчетов подтверждается обоснованностью допущений, а также согласованностью с экспериментальными результатами.

**Положения, выносимые на защиту:**

1. В тонких пленках с полярной ориентацией в LNOI, в отличие от пластин LN, рост доменов обусловлен формированием зубцов на заряженной доменной стенке, а также образованием изолированных нанодоменов за счет коррелированного зародышеобразования
2. Ускорение роста доменов в пленках LN и замедление роста в пластинах LN и в пленках LN с диэлектрическим слоем при увеличении относительной влажности обусловлено образованием и увеличением водного мениска в точке контакта зонд-образец.
3. Различие формы и кинетики роста изолированных доменов в пленках в LNOI и пластинах LN с неполярной ориентацией, обусловлено повышенной объемной проводимостью пленок.
4. Эффект самоорганизованного формирования гребневых доменов с упорядоченным чередованием длины зубцов и кратным увеличением пространственного периода при сканировании проводящим зондом СЗМ обусловлен взаимодействием заряженных доменных стенок.
5. Создание регулярных доменных структур с субмикронными периодами в пленках с полярной ориентацией и диэлектрическим слоем обусловлено эффективным экранированием при повышенной температуре, а в пленках с неполярной ориентацией слабым междоменным взаимодействием.

**Апробация результатов.**

Основные результаты работы были представлены, в том числе лично автором, на 9 российских и международных конференциях и симпозиумах: 1) 3-й международной конференции “Scanning probe microscopy” (SPM-2019-RCWDFM, Екатеринбург, 2019); 2) Международной онлайн-конференции «Исследование сегнетоэлектрических материалов российскими учёными. Столетие открытия сегнетоэлектричества» (Екатеринбург, 2020); 3) XXV Международном симпозиуме «Наноп физика и наноэлектроника» (Нижний

Новгород, 2021); 4) Международной конференции «The 12<sup>th</sup> Asian Meeting on Ferroelectricity» (AFM-AMEC, Северная Паттайя, 2021); 5) XXII Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков (ВКС-XXII, Екатеринбург, 2021); 6) Международной онлайн-конференции “IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectric” (ISAF, Сидней, 2021); 7) Девятой Международной конференции «Кристаллофизика и деформационное поведение перспективных материалов» (Москва, 2021); 8) Международной конференции «28th International Conference on Advanced Laser Technologies (ALT’21)» (Москва, 2021); 9) XXVI симпозиуме «Нанозифика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 2022).

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

Основные результаты опубликованы в 11 печатных работах, в том числе в 3 статьях в рецензируемых научных изданиях из перечня ВАК и в 8 тезисах международных и всероссийских конференций. Диссертационная работа выполнена с использованием оборудования Уральского центра коллективного пользования «Современные нанотехнологии» ИЕНиМ УрФУ в рамках исследований, проводимых при частичной поддержке РФФ (грант 19-12-00210), а также РФФИ (гранты 19-32-90052 и 20-42-660025).

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. Компьютерное моделирование проводилось совместно с к.ф.-м.н. М. С. Кособоковым. Создание доменных структур и их визуализация методами сканирующей зондовой микроскопии проводились лично автором. Напыление полосовых металлических электродов проводилось совместно с м.н.с. Е. А. Пашниной. Визуализация доменной структуры методом сканирующей электронной микроскопии проводилась совместно с к.ф.-м.н. А. С. Слаутиной. Анализ и обработка результатов проводились лично автором.

### **Структура и объем диссертации**

Диссертационная работа состоит из введения, 5 глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений и списка литературы. Общий объем работы составляет 109 страниц, включая 49 рисунков, список литературы из 146 наименований.

## Глава 1. Литературный обзор

### 1.1 Сегнетоэлектрики. Основные свойства и применение.

Сегнетоэлектриками называют полярные диэлектрики, обладающие в определенном интервале температур при отсутствии внешнего электрического поля спонтанной поляризацией  $P_s$  направленной в двух или более направлениях, которые могут быть изменены (переключены) при помощи внешнего электрического поля. Величина  $P_s$  зависит от температуры, при превышении некоторой температуры, называемой *температурой Кюри*, происходит фазовый переход и сегнетоэлектрик переходит из *сегнетоэлектрической (полярной)* фазы в более высокосимметричную *параэлектрическую (неполярную)* фазу, в которой  $P_s = 0$ . Важно отметить, что в некоторых сегнетоэлектриках переход в неполярную фазу может также происходить и при понижении температуры.

Однородные области в сегнетоэлектриках с определенным направлением  $P_s$  называют *сегнетоэлектрическими доменами*, а границы между этими областями – *доменными стенками* (ДС). В *одноосных* сегнетоэлектриках  $P_s$  может быть ориентирована только вдоль одного направления – *полярной оси*, соответственно в таких кристаллах существуют только два типа доменов, обладающих противоположными направлениями  $P_s$ . В *многоосных* сегнетоэлектриках спонтанная поляризация может быть направлена вдоль нескольких осей, поэтому такие материалы обладают намного более сложной и разнообразной доменной структурой.

Наличие поляризации в сегнетоэлектрике приводит к возникновению на его границах связанных зарядов, являющихся источником *деполяризующего поля*  $E_{dep}$ :

$$E_{dep} = P_s / \varepsilon \varepsilon_0, \quad (1.1)$$

где  $\varepsilon$  - диэлектрическая проницаемость,  $\varepsilon_0$  – электрическая постоянная. Деполяризующее поле стремится изменить направление  $P_s$  на противоположное, являясь аналогом размагничивающего поля в

ферромагнетиках. Несмотря на то, что теоретические значения  $E_{dep}$  значительно превышают пороговые поля, необходимые для переключения поляризации, в реальном случае деполяризующее поле частично или полностью компенсируется (экранируется) перераспределением электрических зарядов в объеме и на поверхности сегнетоэлектрика. Выделяют два механизма компенсации деполяризующего поля – *внешнее* и *внутреннее* экранирование.

Под *внешним* экранированием понимают компенсацию  $E_{dep}$  при перераспределении электрических зарядов во внешней среде. Внешнее экранирование может осуществляться за счет наличия проводящего адсорбционного слоя на поверхности сегнетоэлектрика, эмиссии электронов с полярных поверхностей материала, проводимости на границах зерен в сегнетоэлектрических керамиках или пленках, протекания тока во внешней цепи при переключении с помощью электродов в сегнетоэлектрическом конденсаторе. Скорость внешнего экранирования определяется сопротивлением и емкостью внешней цепи и, как правило, не превышает нескольких микросекунд.

Приповерхностный слой в сегнетоэлектриках рассматривается как эффективный *диэлектрический зазор* конечной толщины, в котором отсутствует поляризация [14,15] (Рисунок 1.1). Диэлектрический зазор разделяет в пространстве связанные и экранирующие заряды, делая невозможным полную компенсацию  $E_{dep}$  и формируя остаточное деполяризующее поле  $E_{rd}$ .

*Объемное* или *внутреннее* экранирование осуществляется за счет трех механизмов: 1) перераспределения электрических зарядов в объеме из-за объемной проводимости материала, 2) переориентации дипольных дефектов [14], 3) инъекции электрического заряда из электродов сквозь диэлектрический зазор [16]. Время объемного экранирования может составлять от нескольких миллисекунд до нескольких дней или даже месяцев [4]. Механизмы внутреннего экранирования позволяют компенсировать  $E_{rd}$ .

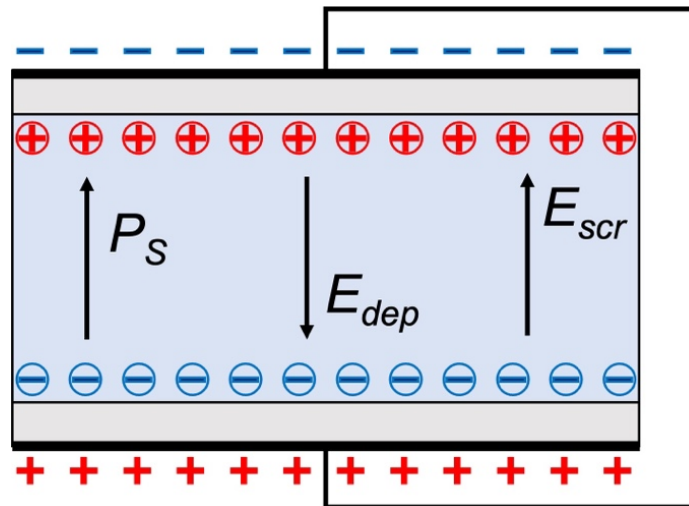


Рисунок 1.1. Короткозамкнутый сегнетоэлектрический конденсатор с диэлектрическим зазором. Стрелками обозначено направление поляризации ( $P_s$ ), деполяризующего поля ( $E_{dep}$ ) и поле внешнего экранирования ( $E_{scr}$ ).

Сегнетоэлектрики являются пиро- и пьезоэлектриками, что обуславливает их широкое применение в электромеханических системах (MEMS) [17,18], пироэлектрических приемниках [19,20], а также устройствах накопления и преобразования энергии [21]. Благодаря возможности создания и контролируемого изменения стабильной доменной структуры, сегнетоэлектрики уже длительное время остаются перспективными материалами для создания энергонезависимой памяти [17,22], несмотря на ряд препятствующих обстоятельств, в особенности эффекта усталости (fatigue effect) [16,23]. Электрооптические и нелинейно-оптические свойства ряда сегнетоэлектриков обуславливают их широкое применение в оптике и микрофотонике [1,24,25].

## **1.2 Переключение поляризации под действием внешнего электрического поля**

Важнейшей отличительной особенностью сегнетоэлектриков является возможность изменения поляризации при помощи приложения внешнего электрического поля. Процесс контролируемого создания доменной структуры с заданными параметрами позволяет управлять свойствами сегнетоэлектрика.

В модельном случае переключения сегнетоэлектрического кристалла из монокристаллического состояния выделяют пять последовательных стадий изменения его доменной структуры [26]:

1) *Зародышеобразование* – наименее изученная фаза из-за сложности визуализации малых иглообразных доменов (Рисунок 1.2а). Вопрос перманентного существования остаточных нанодоменов, которые могут являться зародышами при переключении, в монокристаллических кристаллах остается дискуссионным.

2) *Прямое прораствание доменов* – быстрое прораствание иглообразных доменов в полярном направлении сквозь кристалл за счет генерации ступеней и движения их заряженных концов (кинков) на ДС (Рисунок 1.2б) [27].

3) *Боковое движение ДС* – расширение переключенных областей за счет движения ДС в направлениях перпендикулярных полярной оси (Рисунок 1.2в). Происходит после сквозного прораствания доменов в кристалле. Сопровождается уменьшением угла наклона доменных стенок, большинство ДС становятся нейтральными [28].

4) *Коалесценция* – слияние остаточных доменов в конце процесса переключения (Рисунок 1.2г). На данном этапе сперва наблюдается постепенное замедление сближающихся доменных стенок вплоть до их полной остановки на небольшом расстоянии друг от друга из-за электростатического взаимодействия, затем происходит скачкообразное уменьшение расстояния между ДС и слияние доменов. В ряде случаев наблюдается образование цепей изолированных остаточных нанодоменов вдоль линии слияния [29].

5) *Самопроизвольное обратное переключение доменов* – заключительная стадия, заключающаяся в частичном или полном обратном переключении под действием остаточного деполяризующего поля после окончания приложения импульса (Рисунок 1.2д). На данном этапе происходит боковое движение ДС в обратном направлении с уменьшением размеров переключенной области и образованием доменов с изначальным направлением поляризации [30,31].



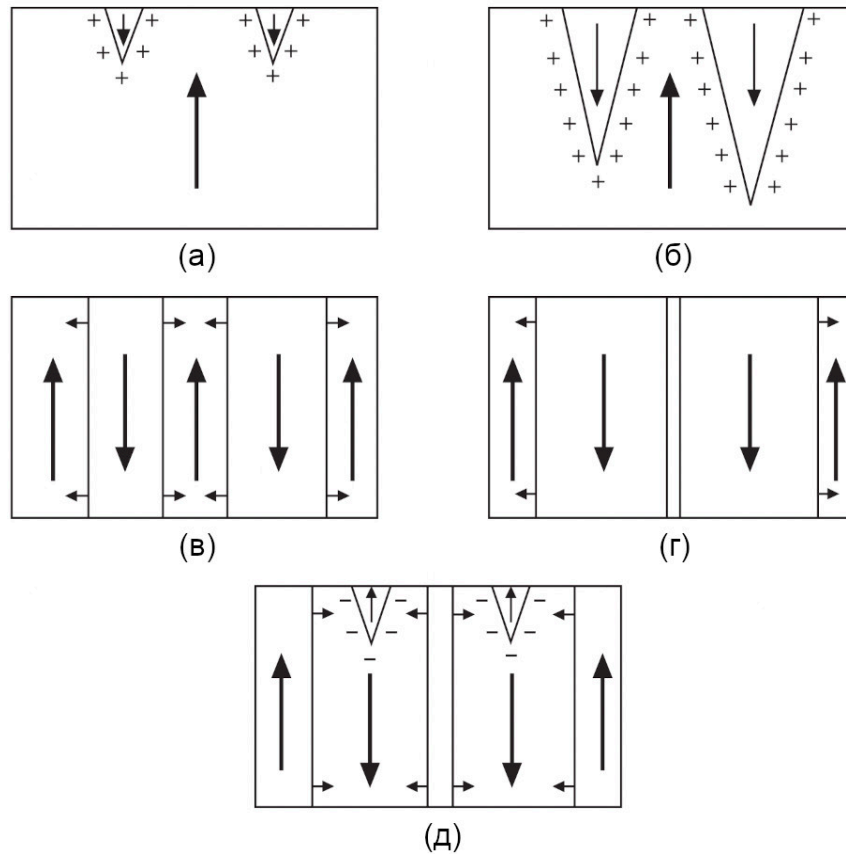


Рисунок 1.2 Основные стадии переключения поляризации в сегнетоэлектрике: (а) зародышеобразование, (б) прямое прорастание доменов, (в) боковое движение доменных стенок, (г) коалесценция, (д) самопроизвольное обратное переключение доменов [26].

Важно отметить существенную неоднородность процесса переключения – стадии могут происходить одновременно в разных частях кристалла даже при переключении под действием однородного электрического поля. Более того, часть стадий может не реализовываться, например, при переключении сегнетоэлектрика из мультидоменного состояния стадии зародышеобразования и прямого прорастания могут отсутствовать [26]. Неоднородность процесса переключения также связана с неоднородным распределением в объеме сегнетоэлектрика локального электрического поля  $E_{loc}$ , под действием которого происходит зародышеобразование и рост доменов.  $E_{loc}$  определяется как сумма внешнего приложенного поля  $E_{ex}$ , остаточного деполаризующего поля  $E_{rd}$  и поля внутреннего экранирования  $E_b$ :

$$E_{loc}(\vec{r}, t) = E_{ex}(\vec{r}, t) + E_{rd}(\vec{r}, t) + E_b(\vec{r}, t) \quad (1.2)$$

При отключении внешнего поля  $E_{ex}$  значение локального электрического поля определяется соотношением между  $E_{rd}$  и  $E_b$ . Поэтому при условии медленного объемного экранирования, если величина  $E_{loc}$  превышает некоторое пороговое поле  $E_{th}$ , происходит самопроизвольное обратное переключение. Следовательно, скорость (запаздывание) объемного экранирования играет ключевую роль в процессе переключения поляризации, определяя стабильность и форму создаваемых доменов. Оценка запаздывания объемного экранирования осуществляется с помощью параметра неэффективности экранирования ( $R$ ):

$$R = \frac{\tau_{scr}}{t_s}, \quad (1.3)$$

где  $\tau_{scr}$  – характерное время объемного экранирования,  $t_s$  – время переключения. Как правило, выделяются три степени эффективности экранирования в зависимости от значения  $R$ : 1)  $R \ll 1$  – «*полное экранирование*», 2)  $R \approx 1$  – «*неполное экранирование*», 3)  $R \gg 1$  – «*неэффективное экранирование*».

«*Полное экранирование*» соответствует квазиравновесным условиям переключения, когда скорость перестроения системы зарядов объемного экранирования соответствует скорости роста доменов. В этом случае растущие домены, как правило, имеют форму правильных многогранников, соответствующих симметрии кристалла.

При «*неполном экранировании*» начинают проявляться эффекты запаздывания компенсации  $E_{rd}$ , что приводит к замедлению движения доменных стенок и потере стабильности их формы. После окончания приложения переключающего импульса наблюдаются эффекты самопроизвольного обратного переключения.

«*Неэффективное экранирование*» соответствует сильно неравновесным условиям переключения поляризации, что приводит к качественно отличающемуся сценарию эволюции доменной структуры. Сильное запаздывание компенсации  $E_{rd}$  приводит к возникновению локального максимума переключающего поля на расстояниях порядка

толщины диэлектрического зазора от ДС, что вызывает появление самоорганизованных нанодоменных структур перед движущейся ДС (*коррелированное зародышеобразование*) и образованию широких доменных границ [26,32]. Эффект коррелированного зародышеобразования был открыт в кристаллах германата свинца  $Pb_5Ge_3O_{11}$  [33] и был детально исследован в ниобате лития  $LiNbO_3$  (LN) [26,34].

### ***1.3 Размерные эффекты в сегнетоэлектриках***

Потенциальная возможность реализации сегнетоэлектрической памяти, наряду с бурным развитием интегральной оптики, делает фундаментальные исследования влияния толщины образцов и размера зерен на физические свойства сегнетоэлектриков (*размерный эффект*) практически важной задачей [22].

Поиск «суперпараэлектрического предела» – минимального размера частицы или толщины пленки для проявления сегнетоэлектрических свойств, аналогичного определяемому в магнетиках суперпарамагнитному пределу [35], исторически широко исследуемая задача. Однако, в отличие от магнитных материалов, сегнетоэлектрические свойства ограничены не существованием тепловых флуктуаций, а преимущественно электрическими и механическими граничными условиями [36]. Поэтому одним из основных направлений в исследовании размерного эффекта сегодня являются изучение как свойств, непосредственно зависящих от толщины кристалла (пленки) или размера частиц, так и свойств, вызванных особенностями синтеза сверхтонких образцов [9], влиянием подложки, механических напряжений на границе с ней [37,38], а также поверхностных эффектов [38,39]. Сохранение спонтанной поляризации с уменьшением толщины вплоть до нескольких постоянных решетки в пленках  $PbZr_{0.2}Ti_{0.8}O_3$  (PZT) было недавно продемонстрировано с помощью просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) [40].

Определяющая роль влияния электростатических граничных условий и поверхностного слоя на сегнетоэлектрические свойства тонких пленок была продемонстрирована в ряде работ с помощью первопринципных расчетов

[41,42]. Проявление размерного эффекта во многом связано с ростом влияния деполяризующего поля при уменьшении толщины образца, приводящего к неустойчивости доменной структуры в тонких пленках [43]. Увеличение деполяризующего поля, в частности, приводит к уменьшению поляризации и диэлектрической проницаемости в тонких пленках и сегнетоэлектрических частицах [39,44–46]. Наблюдалось постепенное уменьшение эффективного пьезоэлектрического коэффициента в керамиках титаната-цирконата свинца и титаната бария [44–46]. В ряде работ было продемонстрировано рост коэрцитивного поля при уменьшении толщины пленки [10,47–49].

Существенное влияние на свойства тонких пленок также оказывает наличие механических напряжений, возникающих на границе между ними и подложкой. В частности, было показано, что наличие механических стрессов может приводить как к увеличению температуры Кюри, так и к ее уменьшению [46,50,51].

## **1.4 Ниобат лития**

### **1.4.1 Структура и основные свойства**

Ниобат лития  $\text{LiNbO}_3$  является одним из наиболее изученных сегнетоэлектриков, поскольку обладает уникальным набором свойств, обеспечивающим его широкое прикладное использование.

При комнатной температуре LN находится в полярной фазе с ромбоэдрической (тригональной) структурой и пространственной группой симметрии  $R3c$  (точечная группа  $3m$ ). При нагреве выше температуры Кюри  $T_c = 1483\text{K}$  близкой к температуре плавления  $1533\text{K}$  ниобат лития переходит в параэлектрическую фазу с пространственной группой симметрии  $R\bar{3}c$ . Кристаллическая решетка LN состоит из разупорядоченных кислородных октаэдров, расположенных друг над другом с небольшим углом поворота и имеющим одну общую грань. Ионы кислорода образуют гексагональную плотную упаковку в плоскостях, перпендикулярных полярной оси. Расстояния между данными плоскостями заполнены на одну треть атомами ниобия, на одну треть атомами лития и на одну треть вакансиями, чередующимися друг с

другом (Рисунок 1.3б). Спонтанная поляризация обусловлена смещением положительно заряженных ионов Li и Nb относительно кислородных октаэдров и составляет  $P_s = 71$  мкКл/см<sup>2</sup> при комнатной температуре [36]. В параэлектрической фазе выше  $T_c$  атомы лития находятся в плоскостях кислородных октаэдров, а атомы ниобия располагаются ровно по центру между этими плоскостями (Рисунок 1.3а) [52–54].

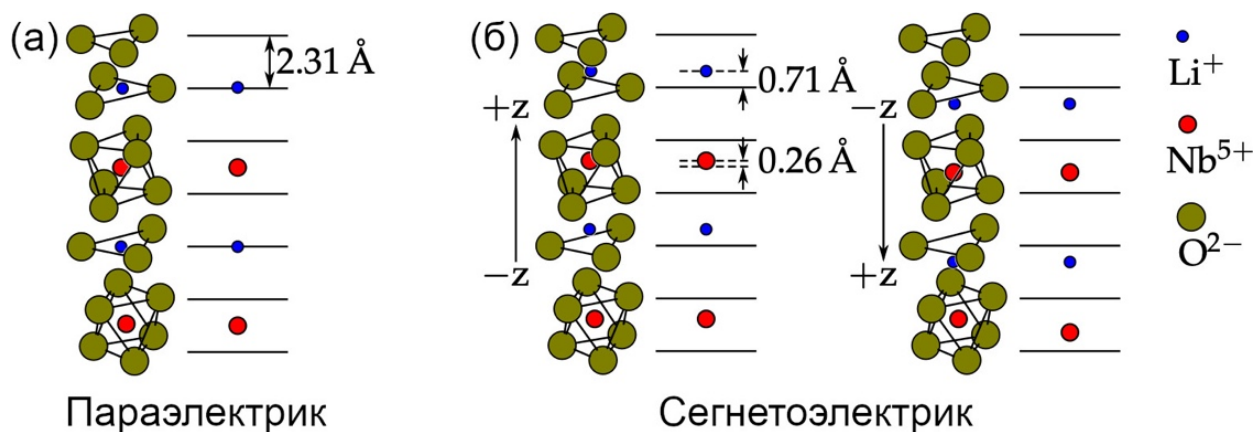


Рисунок 1.3 Структура ниобата лития в (а) параэлектрической и (б) сегнетоэлектрической фазах. Стрелками указано направление поляризации [55].

Несмотря на то, что LN имеет ромбоэдрическую структуру, его свойства удобно описывать в декартовой системе координат с осями  $x$ ,  $y$ ,  $z$ . Ось  $z$  выбирается параллельно полярной оси  $c$  кристалла. Ось  $x$  берется параллельной с одному из трех векторов переноса гексагональной элементарной ячейки, а ось  $y$  выбирается таким образом, чтобы образовывать с  $x$  и  $z$  правую тройку векторов. Плоскости перпендикулярные осям  $x$ ,  $y$ ,  $z$ , соответствующие индексам Миллера  $(2\bar{1}\bar{1}0)$ ,  $(1\bar{1}00)$ , и  $(0001)$ , называют  $X$ ,  $Y$ ,  $Z$  срезами кристалла [53].

Благодаря своей структуре ниобат лития обладает уникальным набором свойств. В частности, для LN характерно наличие высоких пьезоэлектрического, пьезоэлектрического, электрооптического, акустооптического, фотоупругого коэффициентов [1,56]. Выраженный объемный фотовольтаический эффект в сочетании с линейным электрооптическим эффектом приводят к проявлению фоторефрактивных свойств материала – изменению показателя преломления под действием

излучения [1,57]. Особое значение для оптических применений имеет широкое окно пропускания света в диапазоне длин волн от 350 нм до 5,2 мкм [1].

Сегодня ниобат лития применяется в устройствах на поверхностных акустических волнах (SAW), используемых для создания частотных фильтров в телекоммуникационных системах [58]. LN применяется в нелинейной оптике для реализации электрооптических модуляторов [59], оптических параметрических осцилляторов [60,61], нелинейных преобразований частоты излучения, в том числе генераторов второй гармоники (ГВГ) [62].

#### 1.4.2 Доменная структура

Экспериментально было показано, что форма сегнетоэлектрических доменов во многом определяется симметрией кристалла. Для LN как для одноосного сегнетоэлектрика характерна простая доменная структура с противоположно направленными доменами. В условиях полного экранирования изолированные домены в ниобате лития растут в виде шестиугольников со стенками, ориентированными вдоль  $y$  осей (Рисунок 1.4а) [32]. Рост доменов происходит за счет образования зародышей на ДС и их последующего разрастания вдоль нее [32]. Генерация зародышей на ДС происходит вблизи вершин шестиугольных доменов, где  $E_{rd}$  меньше. Важно отметить, что при  $R \ll 1$  скорость разрастания появляющихся зародышей существенно превышает скорость их генерации, что обеспечивает стабильность формы. В случае неэффективного экранирования разрастание зародыша вдоль ДС приводит к появлению  $E_{rd}$ , замедляющего движение ступени. Таким образом, эффективность экранирования определяет соотношение между скоростью генерации зародышей и скоростью их роста. Увеличение  $R$  приводит к постепенному изменению формы переключаемых доменов в LN от шестиугольных к треугольным и, затем, к доменам в виде трехлучевой звезды (Рисунок 1.4б,в) [26].

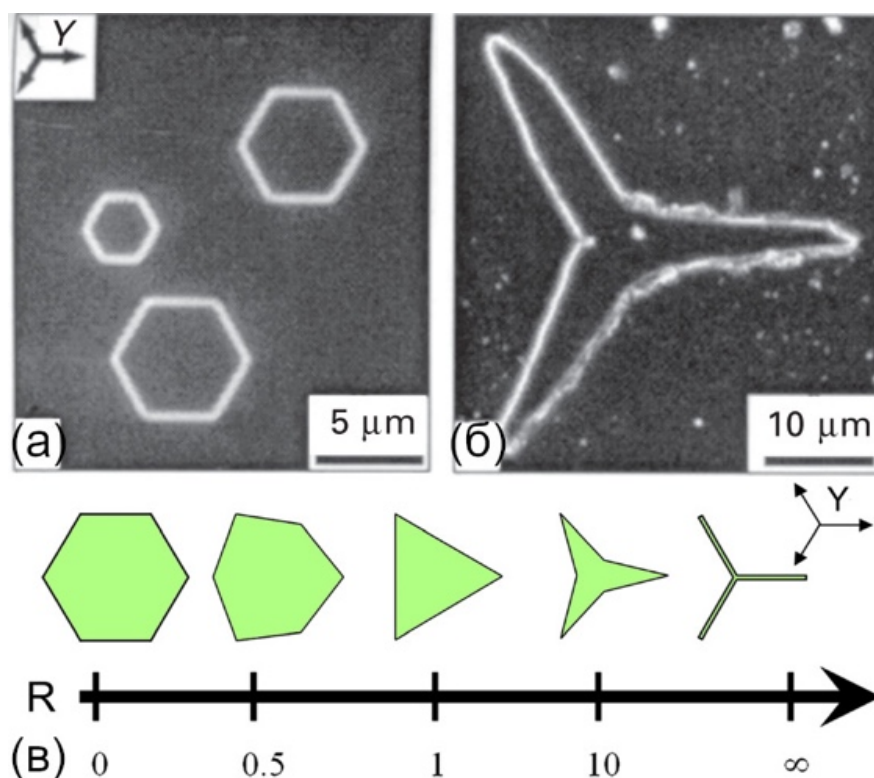


Рисунок 1.4 Оптическая визуализация в режиме темного поля формы доменов в LN в случаях (а) полного и (б) неэффективного экранирования [26]. (в) Компьютерное моделирование формы изолированных доменов в LN в зависимости от  $R$  [4].

#### 1.4.3. Ниобат лития на изоляторе

Технология изготовления слоистых структур ниобата на изоляторе (lithium niobate on insulator, LNOI) была разработана в 2004 году [6] по аналогии с производимыми до этого слоистыми структурами кремния на изоляторе (SOI) [63]. LNOI представляют собой тонкие монокристаллические пленки ниобата лития, помещенные на слой оксида кремния  $\text{SiO}_2$  толщиной несколько микрометров на подложке из кристалла ниобата лития, получаемые по методу температурного скола после ионной имплантации.

Изготовление LNOI начинается с процесса ионной имплантации кристалла LN с помощью ионов гелия (Рисунок 1.5). Доза составляет  $\sim 4 \cdot 10 \times 10^{-16} \text{ см}^{-2}$ , энергия ионного пучка выбирается около  $\sim 200\text{--}400 \text{ кэВ}$  и зависит от требуемой толщины пленки [8]. После имплантации на глубине нескольких сотен нанометров от поверхности кристалла, где тормозное излучение ионов оказывает наибольшее воздействие, образуется

аморфизированный слой. На поверхность другого кристалла LN наносится слой  $\text{SiO}_2$  толщиной несколько микрометров методом плазменно-химического осаждения из газовой фазы, после чего кристалл отжигается в течение нескольких часов. Под слой  $\text{SiO}_2$  или на него могут быть нанесены металлические электроды. Поверхность слоя  $\text{SiO}_2$  полируется механохимическим методом для достижения субнанометровых значений шероховатости. После чего имплантированный кристалл совмещают с кристаллом, на который был осажден  $\text{SiO}_2$  слой, и их прижимают друг к другу с большим давлением. В результате пластины оказываются крепко скреплены между собой (*crystal bonding*). Затем полученный образец отжигается при температуре примерно  $\sim 230^\circ\text{C}$  в течение нескольких часов, в результате чего происходит скол вдоль аморфизированного слоя, и образуется LNOI структура. LNOI дополнительно отжигается при температуре  $\sim 450^\circ\text{C}$  в течение нескольких часов для уменьшения количества точечных дефектов, индуцированных тормозным излучением ионов. Для уменьшения шероховатости и удаления остатков аморфизированного слоя производится механохимическая полировка [64]. Толщина LN пленок в LNOI обычно составляет 300–900 нм [65].

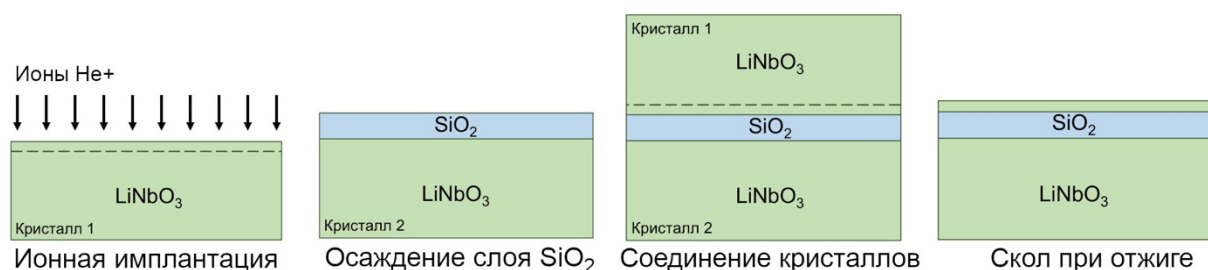


Рисунок 1.5 Основные стадии производства LNOI.

LNOI совмещает в себе все базовые преимущества ниобата лития с такими особенностями как малая толщина, отсутствие оптических потерь из-за рассеяния на межзеренных границах, значительный скачок в показателе преломления света на границе между LN и  $\text{SiO}_2$  ( $\Delta n = 0,67$ ) [7,66]. Такой уникальный набор свойств делает данный материал крайне привлекательным для различных применений в фотонике и интегральной оптике [64,67,68]. На



базе LNOI были созданы прототипы высокоэффективных волноводов [69–71], высокоскоростных электро- и акустооптических модуляторов [66,72,73], кольцевых и дисковых оптических резонаторов [74–77], нелинейных преобразователей длины волны излучения, получаемых при модификации LNOI с помощью РДС, включая генераторы второй гармоники, суммарных и разностных частот излучения [78–81]. Генерация второй гармоники с рекордной нормированной эффективностью преобразования  $4600\%/(\text{Вт см}^2)$  была недавно продемонстрирована в волноводе с РДС, сделанном на базе LNOI [12].

### ***1.5 Сканирующая зондовая микроскопия как метод исследования доменной структуры сегнетоэлектриков***

Сканирующая зондовая микроскопии (СЗМ) – совокупность широко используемых методов для исследования морфологии поверхностей и локальных физических свойств материалов с нанометровым пространственным разрешением. В основе всех СЗМ методов лежит использование специальных детекторов – зондовых датчиков, при помощи которых производится сканирование поверхности материала.

История развития СЗМ начинается с изобретения сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) в 1981 году Г. Биннигом и Г. Рорером, за что уже в 1986 году они получили Нобелевскую премию по физике. В основе СТМ лежит эффект туннелирования электронов (*туннельный ток*) через потенциальный барьер между двумя проводниками – металлическим острием зонда и проводящей поверхностью образца, находящимся на расстоянии порядка нескольких ангстрем друг от друга [82]. Величина туннельного тока используется в качестве сигнала обратной связи, позволяющего определять расстояние от зонда до поверхности материала, что необходимо для восстановления рельефа поверхности с атомарным разрешением. Основной недостаток СТМ – невозможность исследования непроводящих материалов.

Изобретение в 1986 году атомно-силового микроскопа (АСМ) Г. Биннигом, К. Куэйтом и К. Гербером, в котором для регистрации локальных

свойств поверхности используется отклонение или амплитуда колебаний зондового датчика, позволило не только проводить измерения в жидкостных средах, но и существенно расширить класс исследуемых материалов, в том числе изучать свойства непроводящих материалов с нанометровым разрешением [82,83].

### 1.5.1 Атомно-силовая микроскопия

Основной принцип функционирования АСМ близок к СТМ, но в качестве сигнала обратной связи используется амплитуда механических колебаний или смещение зондового датчика, вызываемые силами взаимодействия между зондом и поверхностью образца ( $F_{ts}$ ). Зондовый датчик в АСМ обычно представляет острый пирамидальный или конический отросток (*зонд*) высотой в несколько микрометров, закреплённый на конце упругой прямоугольной консоли (*кантилевера*) (Рисунок 1.6). Латеральное разрешение методики определяется радиусом закругления кончика зонда, который обычно составляет единицы или десятки нанометров.

Выделяют два основных режима работы АСМ: *контактный* и *полуконтактный*. В *контактном* режиме зонд находится в непосредственном контакте с поверхностью образца. Регистрация смещения зонда под действием  $F_{ts}$  осуществляется при помощи оптической схемы, состоящей из четырехсекционного фотодиода, на который падает лазерный луч, отражаясь от конца кантилевера. Локальный рельеф поверхности вызывает изменение  $F_{ts}$ , что приводит к изгибу кантилевера и вертикальному смещению лазерного пятна на фотодиоде. Соотношение фототоков от верхних и нижних секций фотодиода используется для реконструкции рельефа поверхности. Более распространение получило сканирование в режиме *постоянной силы*, когда обратная связь стремится поддерживать вертикальное смещение лазерного пятна на фотодиоде неизменным, что обеспечивает постоянство  $F_{ts}$ .

В *полуконтактном* режиме зонд раскачивается при помощи приложения переменного напряжения к пьезокерамике, на которой закреплён кантилевер. При приближении к поверхности амплитуда колебаний зонда

начинает уменьшаться из-за усиления  $F_{ts}$ , что позволяет ее использовать в качестве сигнала обратной связи. Сканирование в полуконтактном режиме позволяет реконструировать более неоднородный рельеф и обеспечивает меньшие повреждения зонда и образца.

Помимо реконструкции рельефа поверхности различные методики АСМ позволяют исследовать локальные механические, электрические, магнитные и другие свойства материалов с нанометровым разрешением.

### 1.5.2 Силовая микроскопия пьезоэлектрического отклика

Впервые возможность визуализации доменной структуры сегнетоэлектрика при помощи АСМ была продемонстрирована 1992 году [84]. Методика, описанная в этой работе, получила название силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика (СМПО) и широко используется для изучения локальных пьезоэлектрических свойств и визуализации доменной структуры сегнетоэлектриков [85,86]. В основе метода лежит возбуждение локальных электромеханических колебаний поверхности образца, под действием переменного напряжения ( $V_{tip}$ ), прикладываемого к проводящему зонду СЗМ, находящемуся в контакте с поверхностью.

$$V_{tip} = V_{AC} \cos(\omega t), \quad (1.4)$$

где  $V_{AC}$  – амплитуда переменного напряжения,  $\omega$  – частота. В СМПО наиболее часто используются кремниевые зонды с проводящими покрытиями (Pt, Au, Pt/Ir,  $W_2C$  и другие), а также сильнолегированные кремниевые зонды.

Колебания поверхности возникают из-за обратного пьезоэлектрического эффекта и вызывают смещения зонда АСМ и, следовательно, колебания положения лазерного пятна на фотодиоде, регистрируемые по изменениям в фототоке (или напряжении) при помощи селективного усилителя (lock-in amplifier) на частоте возбуждающего напряжения. Измеряемый сигнал  $A(t)$  пропорционален электромеханическим смещениям поверхности:

$$\Delta z_{\omega} \sim A(t) = A_{\omega} \cos(\omega t + \theta), \quad (1.5)$$

где  $\Delta z_{\omega}$  – локальная вертикальная деформация поверхности,  $\theta$  – фазовый сдвиг между возбуждающим и измеряемым сигналами,  $A_{\omega}$  –

амплитуда колебаний. Селективный усилитель позволяет выделить из измеряемого сигнала амплитуду колебаний  $A_\omega$  и фазовый сдвиг  $\theta$  (фаза). Амплитуда колебаний прямо пропорциональна  $V_{AC}$ . Фаза зависит от взаимного направления поляризации в материале и электрического поля, поэтому при переходе зонда между разными доменами изменяется скачкообразно. В сигнале амплитуды преимущественно наблюдается контраст доменных стенок, где  $A_\omega = 0$  (Рисунок 1.6). Приведенные выше рассуждения также справедливы и для латеральных колебаний поверхности ( $\Delta x_\omega$ ), возникающих в случае, существования ненулевой проекции вектора поляризации на плоскость поверхности образца. Вертикальные деформации поверхности вызывают только вертикальные колебания лазерного пятна на фотодиоде, а локальные латеральные деформации, в зависимости от ориентации кантилевера, могут регистрироваться как за счет горизонтального смещения лазерного пятна на фотодиоде при скручивании зонда, так и в вертикальном сигнале (эффект “баклинга”) [86].

В регистрируемом электромеханическом отклике также могут содержаться паразитные вклады от электрострикции, эффекта Вегарда и др. [87]. Наиболее существенным часто оказывается вклад электростатического взаимодействия между зондом и поверхностью образца, вызывающий на первой гармонике в вертикальном сигнале отклик  $A_{ES}(t)$ , пропорциональный  $V_{AC}$ :

$$A_{ES}(t) = \frac{1}{k} \frac{dC}{dz} V_{SP} V_{AC} \sin(\omega t) \quad (1.6)$$

где  $k$  – жесткость кантилевера,  $C$  – емкость системы зонд образец,  $z$  – расстояние от зонда до поверхности,  $V_{SP}$  – поверхностный потенциал.  $A_{ES}(t)$  пропорционален величине приложенного напряжения, как и  $A_\omega$ , и может существенно искажать получаемые изображения доменных структур. Наиболее частым методом подавления электростатического паразитного влияния является использование кантилеверов с большей жесткостью  $k$ .

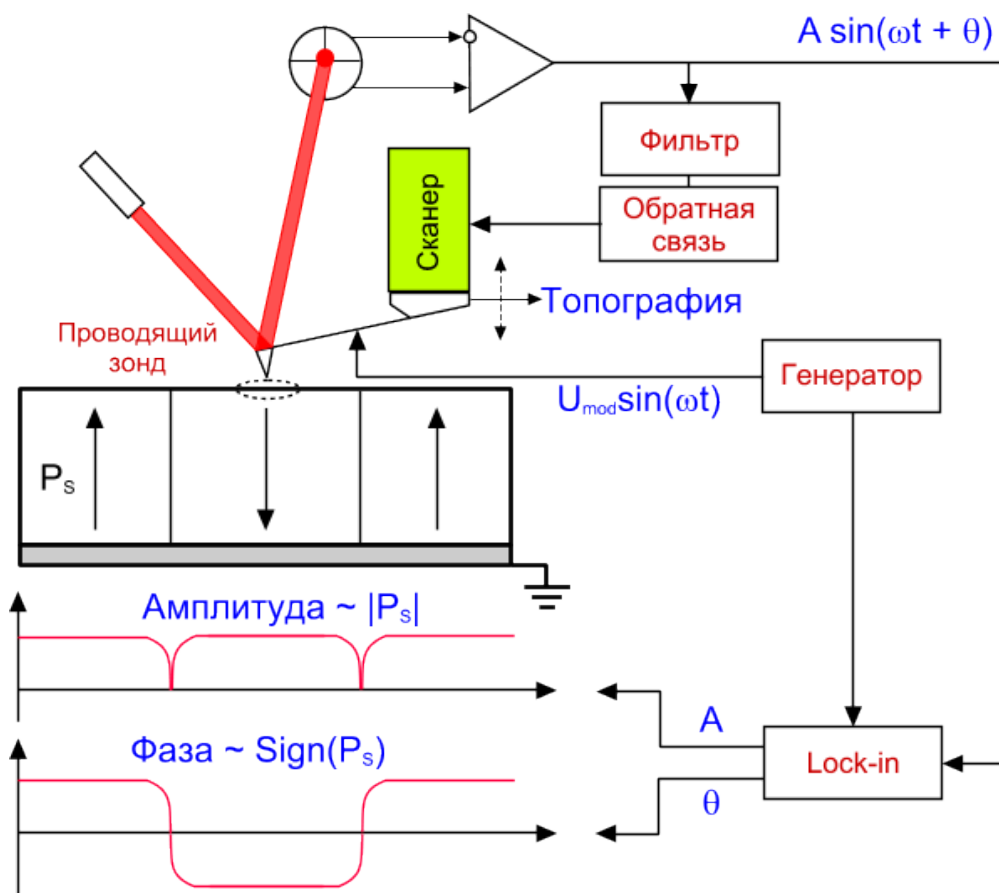


Рисунок 1.6 Принципиальная схема атомного силового микроскопа в режиме визуализации доменов при помощи силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика

### 1.5.3 Локальное переключение поляризации

Возможность локального переключения поляризации при помощи СЗМ широко используется сегодня в доменной инженерии. Суть метода состоит в приложении импульсов напряжения к проводящему зонду АСМ, находящемуся в контакте с поверхностью, что приводит к возникновению вблизи зонда поля выше порогового значения для образования домена. Для описания создаваемого электрического поля часто используются модели точечного заряда [88,89] или заряженной сферы [90].

В наиболее простой модели точечного заряда зонд рассматривается в приближении заряженной сферы с радиусом  $R_{tip}$ , эквивалентной точечному заряду, находящемуся в её центре:

$$q = 4\pi\epsilon_0 V_{tip} R_{tip} \quad (1.7)$$

где  $V_{tip}$  – напряжение, прикладываемое к зонду. Вертикальная ( $E_z$ ) и латеральная ( $E_x$ ) компоненты создаваемого электрического поля в одноосном кристалле будут равны:

$$E_z = \frac{CV_{tip}}{2\pi\epsilon_0(\epsilon+1)\gamma} \frac{1}{\left[\frac{z}{\gamma} - R_{tip}\right]} \frac{1}{\left[x^2 + y^2 + \left(\frac{z}{\gamma} - R_{tip}\right)^2\right]^{3/2}} \quad (1.8)$$

$$E_x = \frac{CV_{tip}}{2\pi\epsilon_0(\epsilon+1)\gamma} \frac{1}{\left[x^2 + y^2 + \left(\frac{z}{\gamma} - R_{tip}\right)^2\right]^{3/2}} x \quad (1.9)$$

где  $C$  – емкость зонда,  $\epsilon = \sqrt{\epsilon_{xy}\epsilon_z}$ ,  $\gamma = \sqrt{\frac{\epsilon_{xy}}{\epsilon_z}}$ ,  $\epsilon_{xy}$  и  $\epsilon_z$  – значения диэлектрической проницаемости вдоль латерального и вертикального направлений, соответственно. Емкость зонда может быть определена как  $C = 4\pi\epsilon_0 R_{tip} \frac{1+\epsilon}{1-\epsilon} \ln\left(\frac{2}{1+\epsilon}\right)$  [91]. Локальное переключение поляризации происходит под действием вертикальной компоненты поля в кристаллах LN с полярной ориентацией (Рисунок 1.7а) и под действием латеральной компоненты поля в кристаллах LN с неполярной ориентацией (Рисунок 1.7б).

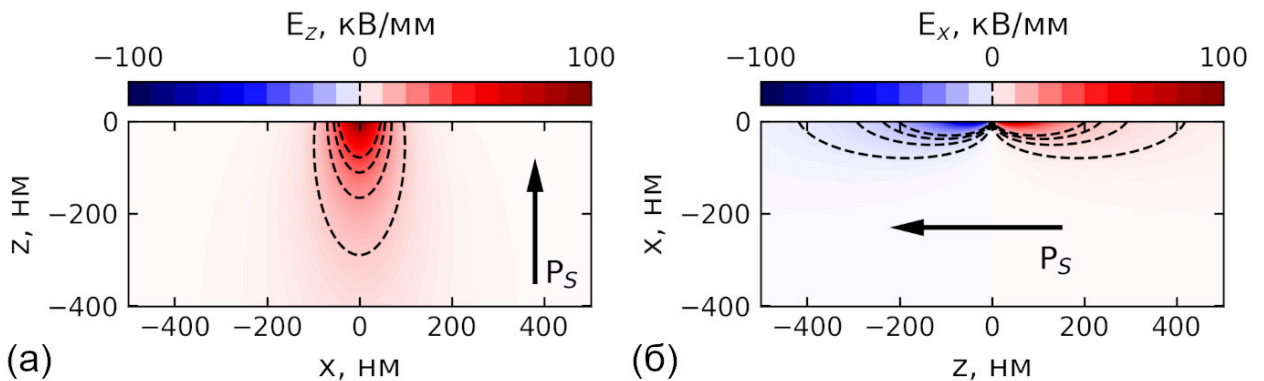


Рисунок 1.7 Распределения (а) вертикальной компоненты поля в кристалле LN с полярной ориентацией и (б) латеральной компоненты поля в кристалле LN с неполярной ориентацией.  $\epsilon_c = 30$ ,  $\epsilon_a = 80$ ,  $R_{tip} = 50$  нм,  $V_{tip} = 100$  В.

Особенностью метода является локальное переключение поляризации в существенно неоднородном электрическом поле, быстро спадающем с увеличением расстояния от точки контакта зонд-образец. Для кристаллов с полярной ориентацией характерно centrosymmetric распределение вертикальной компоненты поля на полярной поверхности (Рисунок 1.8а). В кристаллах с неполярной ориентацией возникновение и рост домена

происходит только в том направлении, где латеральная компонента создаваемого электрического поля направлена в противоположном поляризации направлении (Рисунок 1.8б). При изменении полярности прикладываемого импульса будет происходить рост доменов в противоположном направлении.

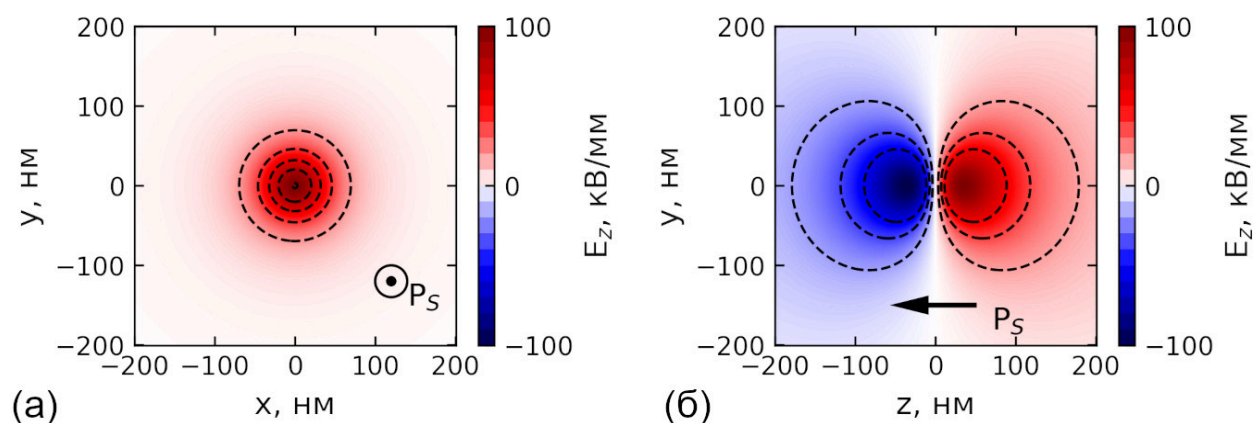


Рисунок 1.8 Распределения на поверхности кристалла (а) вертикальной компоненты поля в кристалле с полярной ориентацией и (б) латеральной компоненты поля в кристалле с неполярной ориентацией.  $\epsilon_c = 30$ ,  $\epsilon_a = 80$ ,  $R_{tip} = 50$  нм,  $V_{tip} = 100$  В.

Форма доменов на поверхности после локального переключения часто визуализируется при помощи СМПО. Для доменов, создаваемых в кристаллах LN с полярной ориентацией, характерна круглая или шестиугольная форма, обусловленная симметрией  $C_3$  ниобата лития (Рисунок 1.9а) [88,92]. Домены, созданные в LN с неполярной ориентацией, на поверхности обычно имеют форму клина, ориентированного в полярном направлении (Рисунок 1.9б) [93,94]. В ряде работ сообщалось, что для большинства сегнетоэлектриков, включая объемные кристаллы LN, размер доменов линейно зависит от величины поля и увеличивается пропорционально логарифму длительности прикладываемого импульса [27,88,92,93].

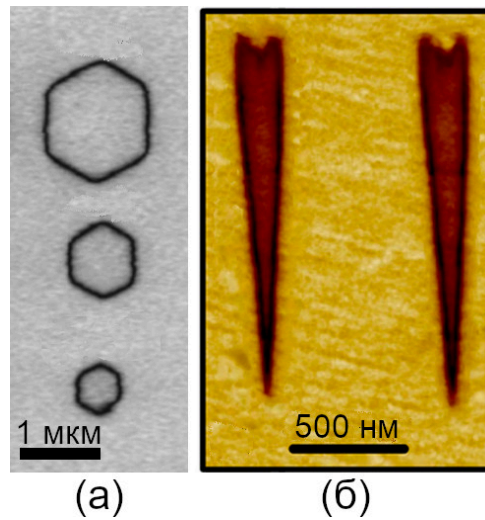


Рисунок 1.9 Форма изолированных доменов, созданных (а) в пленке стехиометрического LN с полярной ориентацией [88]; (б) в тонкой пластине конгруэнтного LN с неполярной ориентацией[93].

Локальное переключение широко использовалось для изучения междоменного взаимодействия в LN, для чего создавались массивы небольших изолированных доменов в кристаллах с полярной и неполярной ориентациями. При уменьшении периода создаваемого массива было выявлено возникновение квазиупорядочения в чередовании размеров изолированных доменов в ряду, объясняемое за счет электростатического взаимодействия между сближающимися доменными стенками (Рисунок 1.10) [95–97].

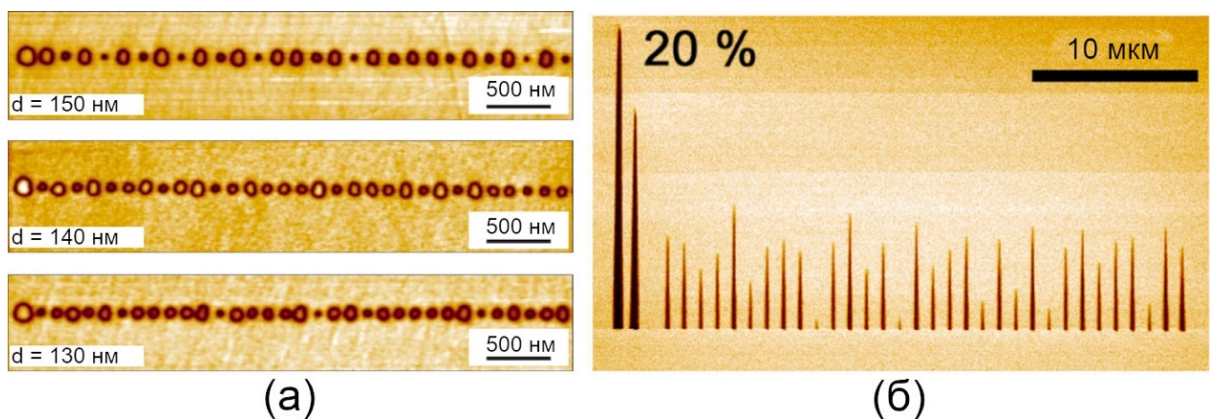


Рисунок 1.10 Массивы доменов с квазиупорядоченным чередованием (а) диаметров изолированных доменов в пластине LN с полярной ориентацией [95], (б) длин клиновидных доменов в пластине MgOLN с неполярной ориентацией [96]



Было продемонстрировано образование гребенчатых доменов с клиновидными зубцами при сканировании с постоянным напряжением перпендикулярно полярной оси в кристаллах LN с неполярной ориентацией [97]. Выявлено возникновение самоорганизованного чередования длин зубцов в гребенчатом домене, приводящее к эффектам удвоения (Рисунок 1.11а) и учетверения (Рисунок 1.11б) пространственного периода структуры.

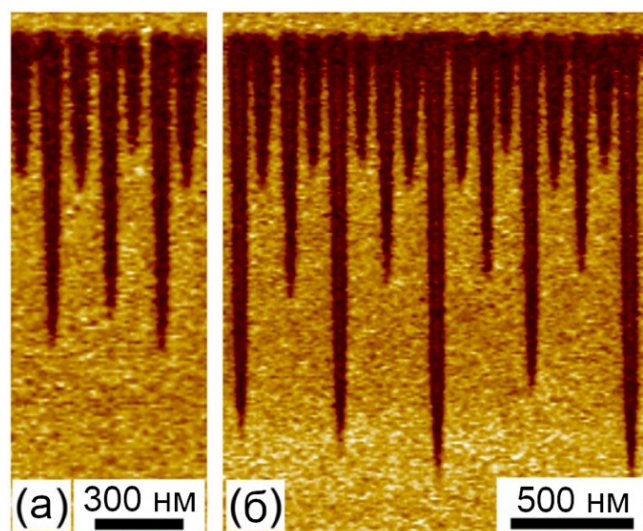


Рисунок 1.11 Гребенчатый домен. Участки с (а) удвоением и (б) учетверением пространственного периода [97].

Значительное влияние на кинетику роста доменов при локальном переключении оказывают внешние условия, в особенности влажность. Возникновение и рост водного мениска в точке контакта зонд-образец с увеличением относительной влажности (RH) непосредственно наблюдались с помощью сканирующей электронной микроскопии [98]. Было выявлено формирование тонкого адсорбционного слоя при высоких значениях RH на поверхности образца, который может быть рассмотрен как плохопроводящий верхний электрод [99]. Наличие такого слоя изменяет условия внешнего экранирования и приводит к протеканию электрохимических реакций на поверхности [100,101]. Интересно, что увеличение относительной влажности (RH) может способствовать как к ускорению роста, так и замедлению роста доменов [102–106].

#### 1.5.4 Прямое прораствание доменов

Для описания прямого прораствания доменов при локальном переключении был предложен кинетический подход [93,107]. В рамках кинетического подхода рост доменов происходит за счет двух процессов (Рисунок 1.12):

- 1) генерации элементарных ступеней с заряженными концами (кинками) на ЗДС под действием полярной компоненты электрического поля  $E_{loc,z}$ ;
- 2) движения кинков вдоль доменной стенки в полярном направлении.

Генерация элементарных ступеней происходит вблизи зонда под действием создаваемого им электрического поля  $E_{ext,z}$ . Деполяризующее поле  $E_{dep,z}$ , создаваемое связанными зарядами в кинках, ослабляет  $E_{ext,z}$  и, в случае неэффективного экранирования, приводит к самопроизвольному обратному переключению после завершения импульса. Таким образом, полярная компонента локального электрического поля вблизи зонда будет равна:

$$E_{loc,z}(r) = E_{ext,z}(r) - E_{dep,z}(r) + E_{scr,z}(r) \quad (1.10)$$

где  $E_{scr,z}$  – полярная компонента поля экранирования.

Внешнее поле  $E_{ext,z}$  быстро уменьшается при удалении от зонда и на расстоянии  $\sim 1$  мкм становится близким к нулю. Удлинение доменов на больших расстояниях от зонда СЗМ при прямом прораствании происходит под действием частично экранированного  $E_{dep,z}$ , создаваемого заряженными кинками:

$$E_{loc,z}(r) = E_{dep,z}(r) - E_{scr,z}(r). \quad (1.11)$$

Экранирование компенсирует деполяризующее поле и замедляет движение кинков при прямом прораствании. Однако, также препятствует спонтанному обратному переключению доменов после завершения импульса.

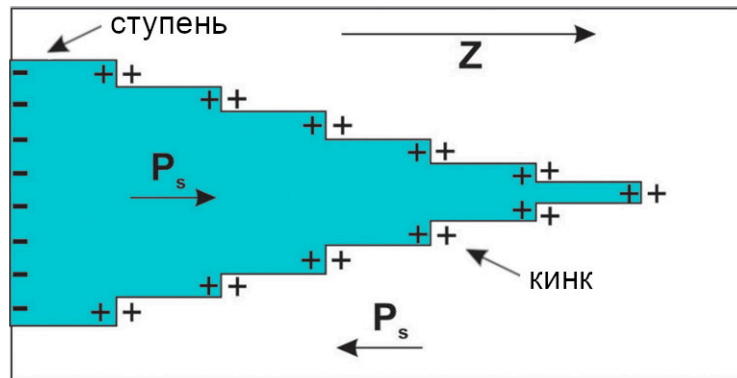


Рисунок 1.12 Схема роста домена [93].

## 1.6 Квазифазовый синхронизм

### 1.6.1 Нелинейные оптические эффекты в диэлектриках

Развитие нелинейной оптики связывается с созданием лазеров – мощных источников когерентного излучения. Известно, что электрическое поле вызывает поляризацию диэлектриков. В случае слабого электрического поля поляризация  $P(t)$  линейно зависит от напряженности. Однако, в сильном поле начинают проявляться нелинейные эффекты, связанные с зависимостью  $P$  более высоких степеней напряженности. В общем случае:

$$P = \varepsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 \dots) \quad (1.12)$$

где  $\chi^{(i)}$  – восприимчивости, описывающие нелинейные эффекты  $i$ -го порядка. В частности, можно показать, что, благодаря существованию не нулевого  $\chi^{(2)}$ ,  $E(t) \sim \cos(\omega t)$  будет вызывать отклик среды пропорциональный удвоенной частоте  $\omega$ , другими словами, в каждой точке будет наблюдаться генерация излучения на удвоенной частоте (ГВГ, генерация второй гармоники) [108]. Эффекты изменения частоты излучения, взаимодействия фотонов друг с другом (параметрическое излучение) при прохождении через нелинейно оптическую среду, предоставляют широкие возможности для управления свойствами световой волны, используемые в том числе для генерации излучения с частотами, отличными от частоты волны накачки [109], генерации фотонов с заданными свойствами [110], управления амплитудой и фазой [111,112] и др.

Одним из принципиальных условий использования нелинейно оптических эффектов в практических целях является необходимость реализации условия фазового синхронизма [108]. В случае ГВГ облучение нелинейной среды длиной  $L$  вдоль некоторого  $z$  направления волной с частотой  $\omega$ :

$$E_{\omega}(z, t) = E_1 \cos(\omega t - k_1 z), \quad (1.13)$$

приводит к отклику нелинейной поляризации на частоте  $2\omega t$ :

$$P_{2\omega}(z, t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_{\omega}^2 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^2 \cos(2\omega t - 2k_1 z), \quad (1.14)$$

где  $E_1$  и  $k_1$  – амплитуда колебаний и волновой вектор  $E_{\omega}$ , соответственно. Генерируемая волна на частоте  $2\omega$  на выходе из кристалла будет иметь вид:

$$\begin{aligned} E_{2\omega}(L, z, t) &= E_0 \cos(2\omega t - 2k_1 z - k_2(L - z)) = \\ &= E_0 \cos(2\omega t - \Delta k z - k_2 L), \end{aligned} \quad (1.15)$$

где  $k_2$  – волновой вектор волны с частотой  $2\omega$ ,  $E_0 \sim \chi^{(2)} E_{\omega}^2$  характеризует амплитуду волны с частотой  $2\omega$ ,  $\Delta k = 2k_1 - k_2$  – расстройка волновых векторов.

Вторичные волны, генерируемые в каждой точке, распространяются в пространстве. Результирующая волна на выходе из среды ( $z = L$ ) с частотой  $2\omega$  будет формироваться в результате сложения вторичных волн. Можно показать:

$$E_{2\omega}(L, t) \sim L \frac{\sin(\Delta k L / 2)}{\Delta k L / 2}. \quad (1.16)$$

Фазовым синхронизмом называется ситуация, при которой фазовая расстройка  $\Delta k = 0$  и волны распространяются синфазно, что приводит к линейному росту интенсивности второй гармоники с расстоянием (Рисунок 1.13). Выполнение условия фазового синхронизма можно добиться за счет эффекта двулучепреломления выбором определенного направления распространения света в кристалле. Для ГВГ направление выбирается таким образом, чтобы показатель преломления обыкновенной волны с частотой  $\omega$  был равен показателю преломления необыкновенной волны с частотой  $2\omega$ .

Однако, выбранное направление не будет соответствовать максимальным значениям тензора  $\chi^{(2)}$ , что снижает эффективность преобразования.

В случае, когда  $\Delta k \neq 0$  интенсивность волны на удвоенной частоте будет периодически изменяться с расстоянием (Рисунок 1.13). Расстояние, на котором амплитуда второй гармоники достигает максимума, называют длиной когерентности  $l_c = \frac{\pi}{\Delta k}$ .

Модификация кристаллов при помощи РДС с шириной полосовых доменов равной  $l_c$  позволяет реализовать условие квазифазового синхронизма, когда изменение знака  $\chi^{(2)}$  на границе между доменами, обеспечивает продолжение увеличения интенсивности распространяющейся волны (Рисунок 1.13) [108,109]. Основное преимущества использования квазифазового синхронизма заключается в возможности выбора направлений с оптимальными значениями тензора  $\chi^{(2)}$ , обеспечивающими максимальную эффективность преобразования.

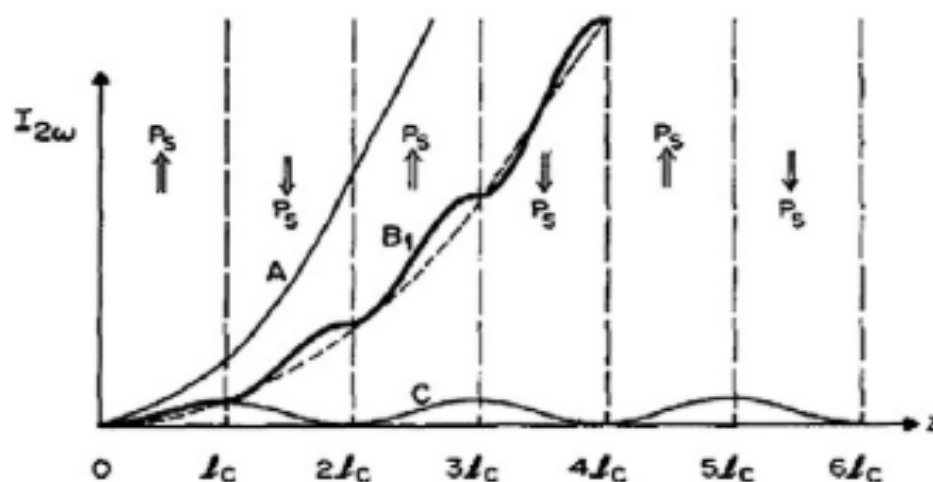


Рисунок 1.13 Интенсивность второй гармоники излучения при: (А) фазовом синхронизме в монодоменном кристалле, (В) квазифазовом синхронизме первого порядка, период РДС -  $2l_c$ , (С) отсутствии фазового синхронизма [2]

### 1.6.2 Регулярная доменная структура

Использование квазифазового синхронизма в нелинейной оптике подтолкнуло развитие методов создания регулярных доменных структур в сегнетоэлектриках с контролируемым периодом.

Модификация LN с помощью РДС была впервые осуществлена с помощью формирования слоев роста в процессе выращивания кристалла методом Чохральского. Из-за нестабильности периода полученной структуры эффективность ГВГ получалась ниже теоретически рассчитанных значений, причем расхождение увеличивалось с увеличением длины кристалла [113,114]. В последующие годы были продемонстрированы возможности создания РДС в LN за счет лазерного нагрева [115], изменения поля смещения при росте кристалла [116], в процессе протонного обмена при условии наличия температурного градиента [117].

Методика создания РДС за счет приложения внешнего электрического поля к периодическим полосовым электродам позволила существенно улучшить стабильность периода структуры и увеличить глубину прорастания переключаемых доменов [118–120]. Переключение поляризации внешним электрическим полем активно используется для создания РДС, применяемых в нелинейно оптических устройствах сегодня [61,121,122].

Важной задачей в нелинейной оптике сегодня является реализация параметрических взаимодействий, когда одна из волн распространяется в противоположном направлении волне накачки. В такой конфигурации обратно распространяющаяся волна может играть роль обратной связи, что позволяет реализовывать параметрическую генерацию света без использования оптических резонаторов. Теоретическая возможность создания такого оптического параметрического осциллятора обратного распространения волны была показана еще в С. Харрисом 1966 году [5]. Сложность практической реализации заключается в необходимости модификации кристалла с помощью РДС с периодом порядка 300 нм, что затруднено из-за существования междоменного взаимодействия. Был

разработан ряд методов создания РДС с субмикронными периодами, включающий в себя создание доменов ионным и электронным пучками [123,124], локальное переключение поляризации методами СЗМ [125], «каллиграфия» [126] и др. Однако, реализация РДС с субмикронными периодами достаточного качества для практического использования в нелинейной оптике остается нетривиальной задачей сегодня. Возможность реализации оптической параметрической генерации обратной волны с использованием условия квазифазового синхронизма вдали от вырождения (период  $\sim 800$  нм) была недавно продемонстрирована в кристаллах  $\text{KTiOPO}_4$  [127].

Перспективы использования LNOI в нелинейной оптике делают актуальным исследование возможности их модификации с помощью РДС [7,68,71,128]. За последние несколько лет был опубликован ряд работ посвященных созданию РДС в тонких пленках в LNOI с полярной и неполярной ориентацией и реализации на их основе нелинейных преобразователей частоты излучения [12,79,81,129–131]. Недавно были продемонстрированы возможности создания РДС с субмикронными периодами с помощью записи доменов ионным пучком [78] в пленках с полярной ориентацией, переключения поляризации с помощью электродов в пленках с неполярной ориентацией [11]. Опубликованные результаты локального переключения поляризации в тонких пленках в LNOI [13,132,133] открывают перспективы для получения РДС с периодом до 300 нм с помощью методик СЗМ.

### ***1.7 Метод каналирования электронов***

При взаимодействии пучка электронов с облучаемым объектом в области взаимодействия первичные электроны претерпевают серию упругих и неупругих рассеяний, после чего могут покинуть образец (обратно отраженные электроны, ООЭ), передавая информацию о составе образца, топографии, толщине слоя и кристаллографии. Коэффициент обратного отражения, являющийся соотношением количества ООЭ к количеству

первичных электронов, зависит от многих параметров, таких как состав образца (атомный номер) и наклон [134]. Кроме того, ориентация кристаллической решетки образца также может влиять на коэффициент обратного отражения электронов за счет эффекта каналирования электронов благодаря существованию «каналов» между атомами в кристаллической решетке. При расположении образца относительно пучка электронов таким образом, что «каналы» между атомами в кристаллической решетке параллельны направлению падения первичных электронов (Рисунок 1.14а), часть электронов пучка могут проникнуть глубже в образец, что приведет к уменьшению коэффициента обратного отражения за счет меньшей вероятности возвращения этих электронов к поверхности и последующей эмиссии с поверхности. При этом существование даже небольшого наклона между ориентацией межатомных «каналов» и направлением распространения электронов пучка увеличивает вероятность взаимодействия электрона с узлами решетки, что способствует росту количества обратно рассеянных электронов и, соответственно, увеличению коэффициента обратного отражения электронов (Рисунок 1.14б).

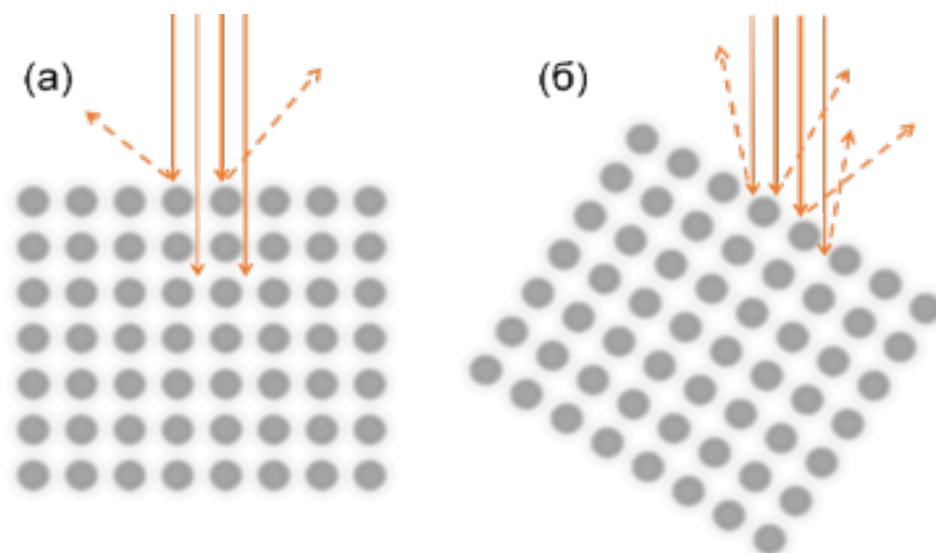


Рисунок 1.14 Схематичное изображение эффекта каналирования при расположении «каналов»: (а) параллельно падающему пучку и (б) под углом [134]



Описанные выше «каналы» в действительности являются областями в кристаллической решетке с меньшей плотностью заряда, создаваемой атомами решетки, вследствие чего электроны претерпевают меньшее рассеяние при прохождении этих областей.

Формирование контраста каналирования может быть описано с учетом волновой природы электрона. Первичные электроны, попадая в кристалл, когерентно рассеиваются (брэгговское рассеяние) атомами кристаллической решетки. Вследствие этого формируется электронно-волновое поле, которое может быть описано суперпозицией множества стоячих волн (блоховские волны), характеризующихся энергией первичных электронов, структурой, ориентацией, а также размером кристалла. В зависимости от ориентации кристаллической решетки относительно направления первичного электронного пучка, поле электронных волн внутри кристалла имеет большую или меньшую плотность на атомных ядрах, что приводит к большему или меньшему неупругому обратному рассеянию. После многократного рассеяния электроны могут покинуть образец через облучаемую поверхность. Результирующие ООЭ имеют широкое распределение энергии, но их интенсивность (количество) зависит от кристаллографического направления относительно падающего первичного пучка электронов [135].

Регистрация обратно рассеянных электронов методом каналирования в СЭМ позволяет получать изображения с ориентационным (кристаллографическим) контрастом [134,136]. Эффект каналирования электронов наблюдается в тонком приповерхностном слое толщиной 10-100 нм в зависимости от начальной энергии электронов и кристаллической решетки (плотности упаковки) материала. Возникающие регистрируемые вариации в коэффициенте обратного отражения электронов составляют всего 2-5%, что делает метод чувствительным к паразитным вкладам, в частности к возникновению топографического контраста [134].

Вместе с тем метод каналирования электронов представляет особый интерес для исследования доменной структуры в тонких пленках, поскольку позволяет производить их визуализацию без предварительного травления поверхности.

### **1.7 Краткие выводы**

На основе обзора теоретических и экспериментальных работ можно сделать следующие краткие выводы:

1. Процесс формирования доменной структуры при переключении поляризации существенно зависит от эффективности экранирования деполяризующего поля.

2. Монокристаллические пленки ниобата лития на изоляторе рассматриваются сегодня как перспективный материал для использования в микрофотонике и нелинейной оптике.

3. Методы СЗМ могут быть использованы для создания и визуализации доменов с высоким пространственным разрешением. Метод каналирования электронов СЭМ позволяет визуализировать доменные структуры за счет ориентационного контраста.

4. Отсутствуют систематические исследования формирования и роста доменов при локальном переключении поляризации в тонких монокристаллических пленках ниобата лития с неполярной ориентацией. Исследования эволюции доменов при локальном переключении в тонких монокристаллических пленках ниобата лития с полярной ориентацией зачастую носят противоречивый характер.

5. Отсутствуют систематические исследования взаимодействия между доменами в регулярных доменных структурах в монокристаллических пленках ниобата лития на изоляторе.

6. Создание регулярных доменных структур в монокристаллических пленках ниобата лития с субмикронными необходимо для изучения параметрической генерации света обратной волны.

## Глава 2. Исследуемые образцы, экспериментальные установки и методики экспериментов

### 2.1 Исследуемые образцы

Исследование размерных эффектов и эволюции доменов было проведено с использованием монокристаллических пленок в ниобате лития на изоляторе, а также в пластинах LN с полярной и неполярной ориентациями. Образцы для исследования были произведены и предоставлены компанией Jinan Jingzheng Electronics Co. Ltd. (Цзинань, Китай).

#### 2.1.1 Ниобат лития на изоляторе

Проведено исследование формирования и эволюции изолированных доменов, а также регулярных доменных структур в монокристаллических пленках в LNOI с полярной ориентацией (Z-срез) и неполярной ориентацией (X-срез).

Образцы LNOI с полярной ориентацией имели две конфигурации:

- 1) с электродом со структурой LN пленка/Cr/Pt/Cr/SiO<sub>2</sub>/LN (Рисунок 2.1а);
- 2) с диэлектрическим слоем и электродом со структурой LN пленка/SiO<sub>2</sub>/Cr/Au/Cr/LN (Рисунок 2.1б).

Толщина верхней LN пленки составляла 700 нм, LN подложки – 500 мкм, нижних электродов из Pt или Au – 100 нм. Толщина слоя Cr, примыкающего к пленке LN, – 30 нм, а слоя Cr, примыкающего к SiO<sub>2</sub> – 10 нм. Толщина слоя SiO<sub>2</sub> в структурах с электродом составляла 2 мкм, а в структурах с диэлектрическим слоем и электродом – 1 мкм. При проведении исследований нижние электроды заземлялись.

LNOI с неполярной ориентацией имели структуру LN пленка/SiO<sub>2</sub>/LN. Толщина LN пленки – 300 нм, SiO<sub>2</sub> слоя – 2 мкм, LN подложки – 500 мкм (Рисунок 2.1в).

Образцы были изготовлены методом температурного скола после ионной имплантации. Шероховатость верхней поверхности LN пленки не

превышала 1 нм. LNOI приклеивались к металлической заземленной подложке с помощью токопроводящей серебряной пасты.

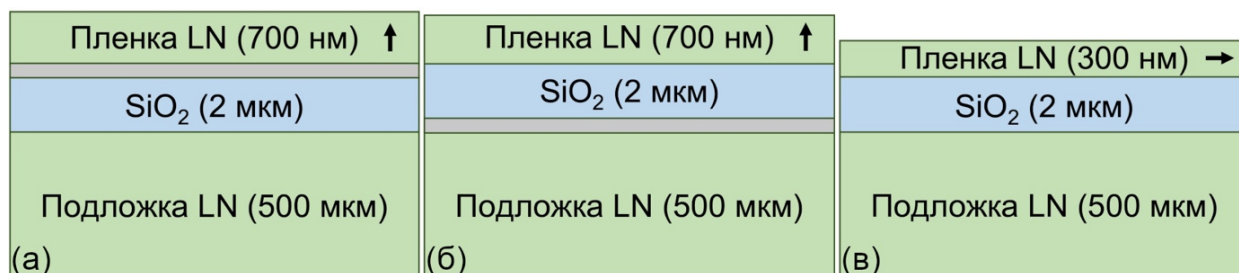


Рисунок 2.1 Схема образцов LNOI. Z-срез LNOI (а) с нижним электродом, (б) с диэлектрическим слоем; (в) X срез LNOI. Серым цветом обозначены металлические электроды в (а) Cr/Pt/Cr и в (б) Cr/Au/Cr.

### 2.1.2 Монокристаллы ниобата лития

Исследовались монокристаллические пластины LN с полярной и неполярной ориентацией.

Толщина пластин LN с полярной ориентацией составляла 20 мкм (Рисунок 2.2а). На нижнюю поверхность наносился электрод из хрома, после чего образец приклеивался этой стороной к металлической подложке с помощью токопроводящей серебряной пасты.

Толщина пластин LN с неполярной ориентацией составляла 500 мкм (Рисунок 2.2б). Образцы приклеивались нижней стороной к металлической подложке с помощью токопроводящей серебряной пасты.

Шероховатость поверхности пластин LN составляла менее 1 нм.

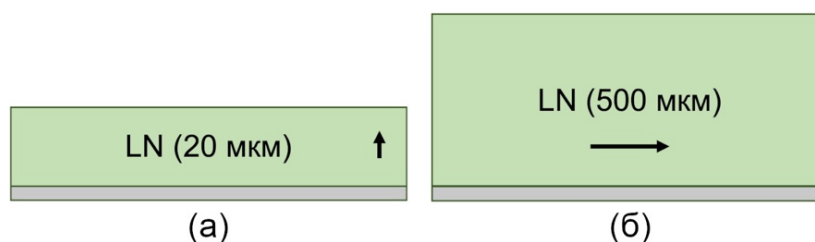


Рисунок 2.2 Схема монокристаллических пластин LN (а) с полярной ориентацией и (б) с неполярной ориентацией. Серым цветом обозначены заземляемые электроды.

## 2.2 Экспериментальные установки

### 2.2.1 Сканирующая зондовая микроскопия

Создание изолированных доменов и регулярных доменных структур, а также их визуализация на поверхности образца производилась при помощи сканирующих зондовых микроскопов MFP-3D (Oxford Instruments, США) (Рисунок 2.3а) и Ntegra Aura (НТ-МДТ, Россия) (Рисунок 2.3б). Для создания доменов использовалась методика локального переключения. Локальное переключение осуществлялось при помощи приложения переключающих импульсов, генерируемых при помощи платы сбора данных NI-6251USB (National Instruments, США) и усиливаемых с помощью высоковольтного усилителя Trek-677B (ТРЕК, США). Визуализация доменов и доменных структур осуществлялась при помощи силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика. Использовались кремневые АСМ зонды NSC 16, 18 (Mikromash, Эстония) с проводящим покрытием Ti/Pt, а также зонды, покрытые карбидом вольфрама HA\_NC/W<sub>2</sub>C и HA\_HR/W<sub>2</sub>C (ScanSens, Германия), с радиусом закругления <40 нм.

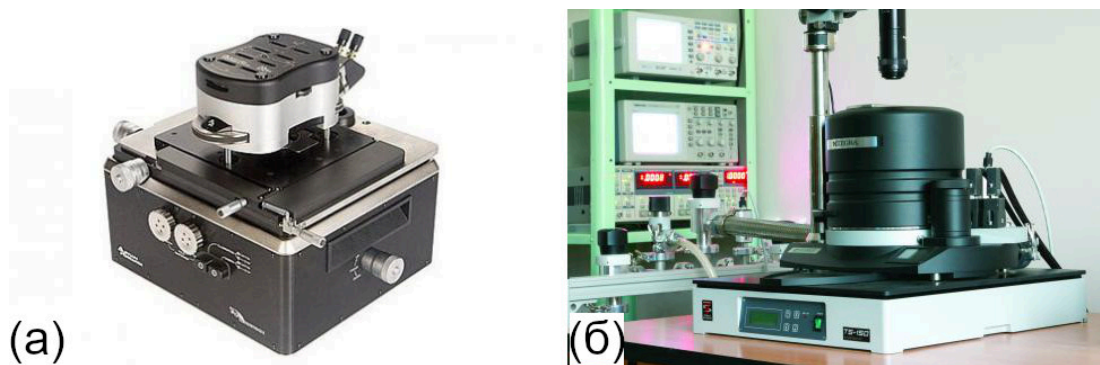


Рисунок 2.3 Сканирующие зондовые микроскопы (а) MFP-3D (Oxford Instruments, США) и (б) Ntegra Aura (НТ-МДТ, Россия)

Локальное переключение проводилось в атмосфере азота с контролируемой относительной влажностью RH в диапазоне от 0% (сухой азот) до 80%, устанавливаемой путем продувания постоянным потоком камеры микроскопа с образцом. Измерение RH осуществлялась с помощью встроенного датчика влажности.

Исследования при повышенной температуре до 100°C производились на микроскопе Ntegra Aura (НТ-МДТ, Россия) с термостолком. Измерение температуры производилось встроенной термопарой.

### 2.2.2 Сканирующая электронная микроскопия

Изображения с ориентационным контрастом были получены методом каналирования электронов с помощью термоэмиссионного сканирующего электронного микроскопа EVO-LS (Carl Zeiss, Германия) при ускоряющем напряжении 10 кВ, рабочем расстоянии 4-6 мм с использованием четырехсекционного детектора обратно-отраженных электронов HDBSD.

Создание полосовых электродов производилось методом электронно-лучевой литографии. Облучение сфокусированным электронным пучком производилось при помощи аналитической рабочей станции Auriga CrossBeam (Carl Zeiss, Германия). Управление положением пучка и контроль параметров облучения осуществлялись при помощи системы электронно-лучевой литографии Elphy Multibeam (Raith GmbH, Германия).

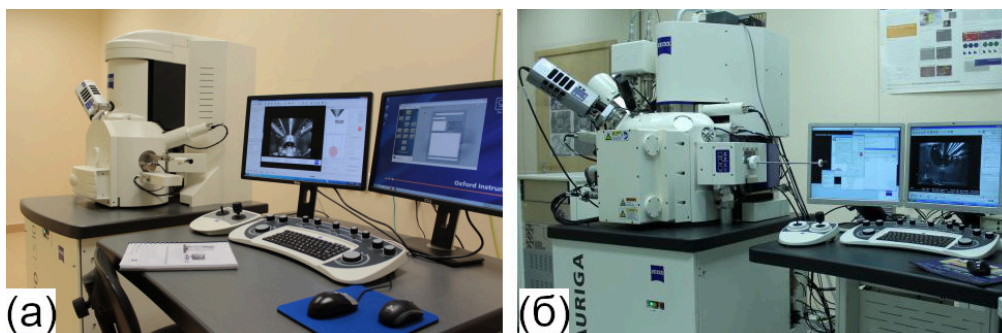


Рисунок 2.4 Сканирующие электронные микроскопы (а) EVO-LS (Carl Zeiss, Германия) и (б) Auriga CrossBeam (Carl Zeiss, Германия)

## 2.3 Методики экспериментов

### 2.3.1. Методы сканирующей зондовой микроскопии

Методика силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика (СМПО) использовалась для визуализации исследуемых доменов и доменных структур. Величина прикладываемого напряжения составляла 3-7 В. Частота возбуждения выбиралась вдали от первого контактного резонанса и в большинстве случаев составляла 21 кГц.

Изолированные домены в пластинах LN и пленках в LNOI с полярной ориентацией создавались при помощи приложения к проводящему зонду микроскопа, находящемуся в контакте с поверхностью образца, прямоугольных импульсов напряжения с амплитудами 30-200 В и длительностью 0,1-150 с.

Изолированные домены в пленках в LNOI с неполярной ориентацией создавались при помощи приложения к зонду прямоугольных импульсов разной полярности с амплитудой 50-300 В и длительностями 0,1-100 с. В случае создания и роста доменов к заземленному электроду расстояние до него от точки приложения импульса составляло 4 мкм (Рисунок 2.5а). Гребенчатые домены в пленках в LNOI с неполярной ориентацией создавались при помощи сканирования вдоль оси Y с постоянным напряжением -175 В и скоростью 5 мкм/с (Рисунок 2.5б).

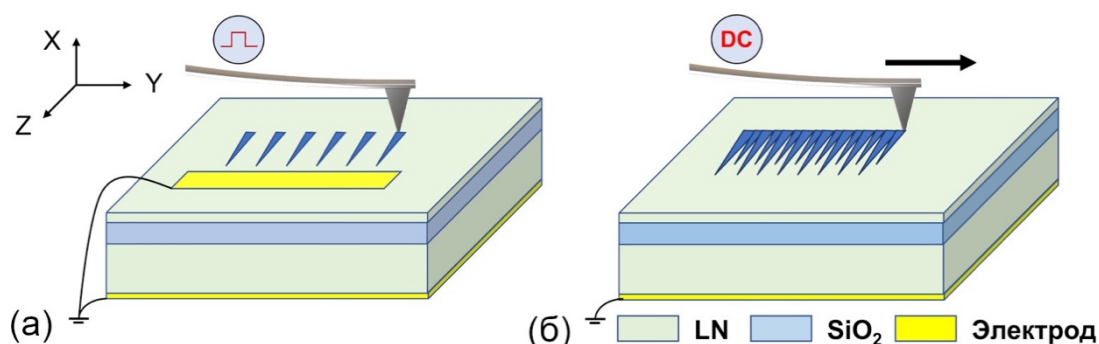


Рисунок 2.5. Схемы (а) создания и роста доменов к заземленному полосовому электроду, (б) создания гребенчатых доменов в пленках в LNOI с неполярной ориентацией.

Создание полосовых доменов и регулярных доменных структур в пластинах LN и пленках в LNOI с полярной ориентацией производилось при помощи сканирования в контактном режиме с приложением постоянного напряжения к зонду 50-200 В и скоростью 0,1-10 мкм/с (Рисунок 2.6а). Регулярные доменные структуры в пленках в LNOI с неполярной ориентацией создавались при помощи поточечного локального переключения импульсами с амплитудой от -175 В до -200 В и длительностью 1 с (Рисунок 2.6б).

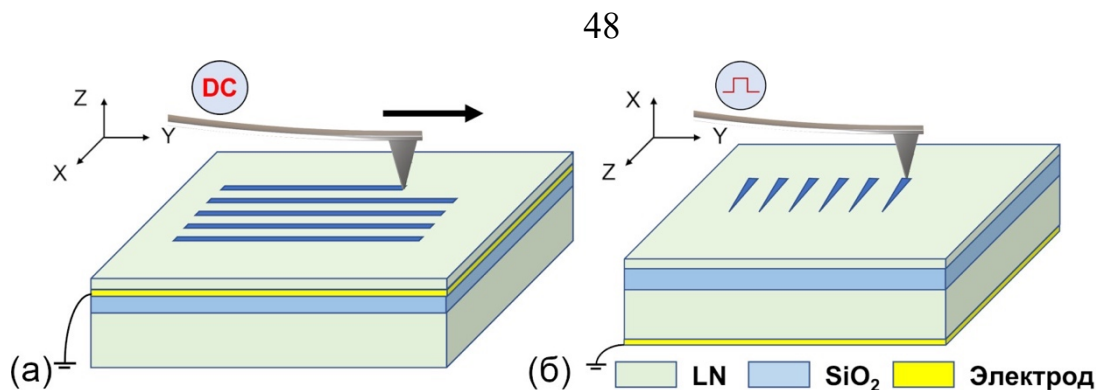


Рисунок 2.6. Схемы создания РДС в пленках в LNOI (а) с полярной ориентацией, (б) с неполярной ориентацией.

Нижний электрод при переключении доменов был заземлен. Для предотвращения самопроизвольного обратного переключения поляризации зонд отрывался от поверхности образца перед выключением напряжения при завершении переключения. Переключение доменов и их визуализация проводились в атмосфере азота с контролем влажности и температуры. Относительная влажность варьировалась в диапазоне от 0 до 80%, температура – от 25 до 100 °С.

Размер доменов, создаваемых на полярных срезах кристаллов и пленок характеризовался величиной эффективного диаметра ( $D$ ), определяемого как диаметр круглого домена с равной площадью  $D = 2\sqrt{A/\pi}$ , где  $A$  – площадь домена. Значение диаметра усреднялось для нескольких доменов, созданных при идентичных условиях.

### 2.3.2. Методика создания полосовых электродов

Электроды формировались методами электронно-лучевой взрывной (lift-off) литографии. На очищенную поверхность LNOI наносился слой фоторезиста NANO 950 PMMA A4 толщиной 100 нм. После чего производилось облучение фоторезиста сфокусированным электронным пучком. Создаваемые при облучении фоторезиста структуры представляли собой прямоугольники размером 200 мкм × 80 мкм. Доза облучения 400 мкКл/см<sup>2</sup>. Фоторезист проявлялся в смеси проявителя MIF 726 (AZ Microchemicals, Германия) и изопропила в соотношении 1:1, что приводило к удалению засвеченных областей фоторезиста. Далее методом магнетронного



распыления последовательно наносились слои хрома толщиной 20 нм и платины толщиной 30 нм. После удаления фоторезиста оставались только металлические слои, нанесенные на подложку в окнах фоторезиста.

### 2.3.3. Расчеты методом конечных элементов

Численное моделирование распределения полярной компоненты электрического поля вблизи зонда СЗМ при локальном переключении поляризации осуществлялось методом конечных элементов в рамках модуля AC/DC Electrostatics Module программного пакета COMSOL Multiphysics (Швеция). Для расчета использовались трехмерные модели области вблизи контакта между зондом СЗМ и пленкой LN размером не менее  $10 \times 20 \times 20$  мкм<sup>3</sup>. Моделируемая область дискретизировалась при помощи пространственной сетки, состоящей из тетраэдрических элементов второго порядка. Размер единичного элемента в сетке вблизи точки контакта зонд – образец не превышал 1 нм. Используемые при расчете значения диэлектрической проницаемости LN составляли  $\epsilon_a = 80$ ,  $\epsilon_c = 30$ .

## 2.4 Краткие выводы

На основе обзора используемых экспериментальных установок и методик можно сделать следующие краткие выводы:

1. Для исследования размерных эффектов и эволюции доменов использовались монокристаллические пленки ниобата лития на изоляторе, а также в пластины LN с полярной и неполярной ориентациями.
2. Создание изолированных доменов производилось при помощи методики локального переключения СЗМ, а регулярные доменные структуры создавались сканированием с приложением постоянного напряжения к зонду.
3. Визуализация созданных доменов и РДС осуществлялась при помощи СМПО и метода каналирования электронов СЭМ.
4. Метод конечных элементов был использован для расчета пространственного распределения полярной компоненты электрического поля вблизи точки контакта зонд – образец при локальном переключении.

## Глава 3. Рост доменов при локальном переключении поляризации на полярных срезах

### 3.1. Рост и изменение формы доменов

Было проведено детальное сравнение роста, формы и размеров изолированных доменов, образующихся при локальном переключении в монокристаллических пластинах LN и тонких монокристаллических пленках в LNOI с полярной ориентацией.

#### 3.1.1. Тонкие пластины

Производилось локальное переключение поляризации в закрепленных на металлической подложке тонких монодоменных пластинах LN толщиной 20 мкм со сплошным Cr электродом на Z– полярной поверхности, в атмосфере сухого азота. Форма создаваемых изолированных доменов при увеличении размеров изменялась от круглой до шестиугольной, характерной для кристаллов с симметрией  $C_3$  (Рисунок 3.1а). Аналогичное изменение формы наблюдалось ранее в монокристаллических пленках стехиометрического LN толщиной 850 нм, полученных при помощи полировки и травления [88].

Производилось измерение зависимости от приложенного напряжения и длительности импульса эффективного диаметра доменов  $D$ .

Теоретические значения диаметра доменов от величины напряжения при локальном переключении в кристаллах с полярной ориентацией было рассчитано из распределения полярной компоненты электрического поля вблизи контакта зонд – образец (Уравнение 1.8). Считая, что на границе домена  $E(r) = E_{th}$ , где  $E_{th}$  – пороговое поле, было получено выражение, описывающее зависимость эффективного диаметра от величины приложенного напряжения:

$$D(V_{tip}) = 2a \sqrt{V_{tip}^{2/3} - \frac{R_{tip}^2}{a^2}} \quad (3.1)$$

где  $a = \sqrt[3]{\frac{CR_{tip}}{2\pi\epsilon_0(1+\epsilon)E_{th}}}$ . Полученное уравнение 3.1 успешно использовалось для аппроксимации экспериментальных данных (Рисунок 3.1б).

Продemonстрировано, что диаметр доменов не изменялся с увеличением длительности импульса для импульсов короче 10 с (Рисунок 3.1в). Этот факт может быть объяснен за счет высоких пороговых полей и неэффективности экранирования деполяризующего поля в пластине LN, которое возникает из-за существования некомпенсированного заряда, образующего в процессе роста домена.

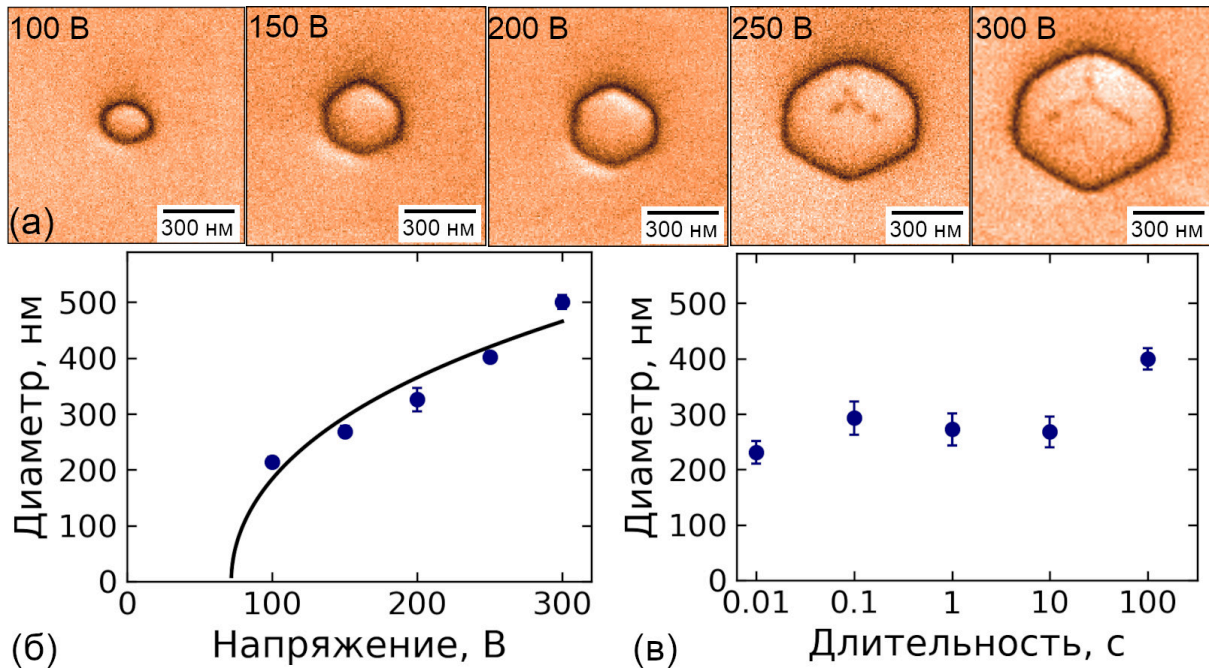


Рисунок 3.1 Рост доменов при локальном переключении в пластине LN с полярной ориентацией толщиной 20 мкм. (а) СМПО изображения доменов для различных напряжений. Зависимость эффективного диаметра домена (б) от напряжения при длительности 1 с и (в) от длительности импульса при напряжении 150 В. RH = 0%.

Для исследования формы доменов в объеме пластины LN использовался метод частичного «поэтапного обратного переключения», заключающийся в многократном сканировании созданных изолированных доменов с приложением к зонду постоянного напряжения, не превышающего пороговое значение. В результате происходило частичное обратное переключение, позволяющее проанализировать форму домена в объеме пластины на качественном уровне.

При частичном «поэтапном обратном переключении» наблюдалось изменение формы от шестиугольной к круглой с уменьшением размера, что свидетельствует о конической форме домена в объеме пластины (Рисунок 3.2).

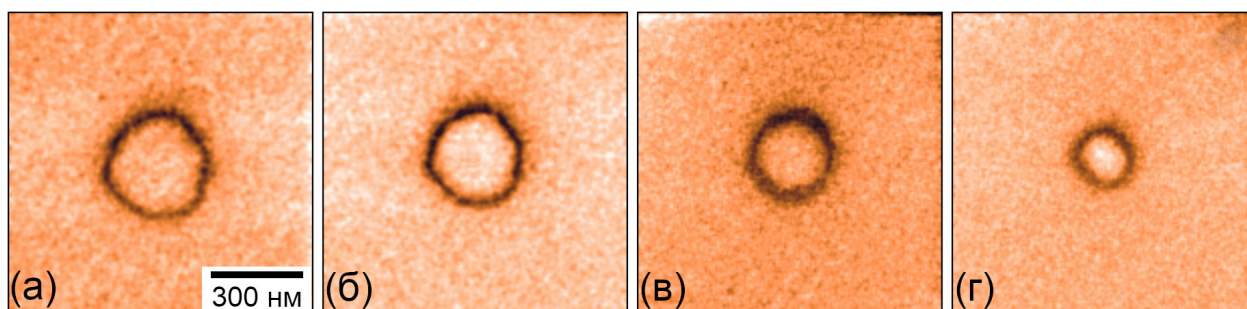


Рисунок 3.2 СМПО визуализация «поэтапного обратного переключения» в пластине LN с полярной ориентацией толщиной 20 мкм. (а) после переключения, а также после различного количества сканирований: (б) 5, (в) 10, (г) 15. Напряжение при сканировании -15 В.

### 3.1.2. Пленки в LNOI с электродом.

При локальном переключении поляризации в пленках в LNOI с электродом форма растущих доменов изменялась от круглой до формы скругленного шестиугольника с волнообразными стенками (Рисунок 3.3а). Появление волнистых доменных границ в процессе роста было отнесено за счет существования остаточных точечных дефектов в пленке, возникших в процессе ионной имплантации и частично удаленных в процессе отжига.

Измеренная зависимость величины эффективного диаметра домена от напряжения (Рисунок 3.3б) была успешно аппроксимирована при помощи уравнения 3.1. Также наблюдалась логарифмическая зависимость диаметра домена от длительности импульса (Рисунок 3.3в).

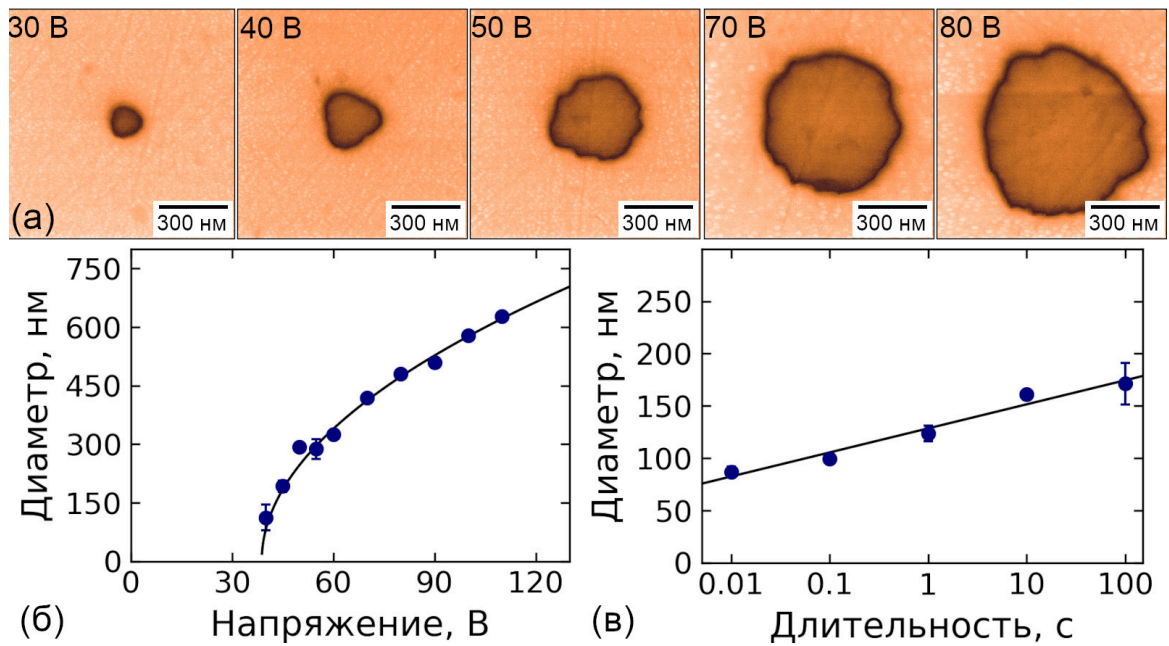


Рисунок 3.3 Рост доменов при локальном переключении в LNOI с электродом. (а) СМПО изображения доменов для различных напряжений. Зависимость эффективного диаметра (б) от напряжения при длительности 1 с и (в) от длительности импульса при напряжении 40 В. RH = 0%

В процессе частичного «поэтапного обратного переключения» наблюдалось образование квазирегулярных цепей изолированных нанодоменов на расстоянии около 100 нм от основного домена (Рисунок 3.4), что свидетельствует о существовании зубчатой заряженной доменной стенки (ЗДС) в объеме пленки.

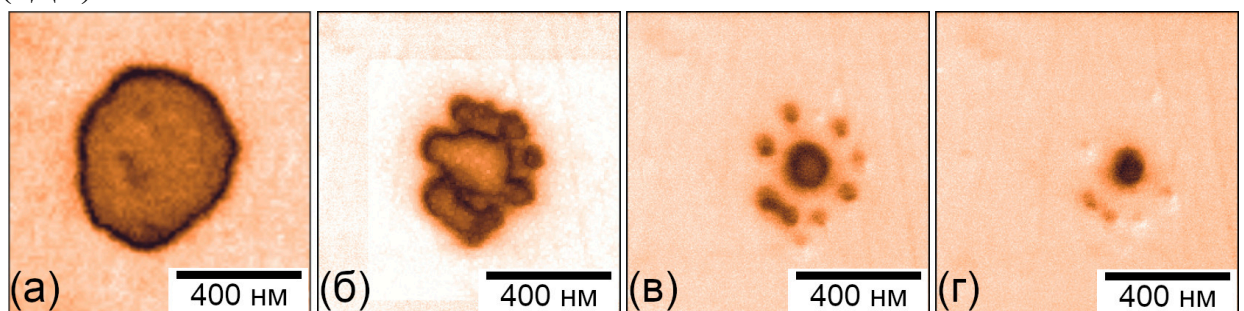


Рисунок 3.4 СМПО визуализация «поэтапного обратного переключения» в LNOI с электродом (а) после переключения, а также после различного количества сканирований: (б) 1, (в) 4, (г) 6. Напряжение при сканировании - 10 В

### 3.1.3. Пленки в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом

Форма изолированных доменов, создаваемых в пленках в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом, при увеличении их размеров качественно изменялась от круглой до неправильной. Вблизи доменов с

эффективным диаметром больше 300 нм наблюдалось возникновение изолированных нанодоменов, растущих и сливающихся с основным доменом (Рисунок 3.5а).

Зависимость эффективного диаметра доменов от напряжения соответствует уравнению 3.1 (Рисунок 3.5б). Выявлена аномальная зависимость размеров домена от длительности переключающего импульса. Для малых круглых доменов наблюдалась традиционная логарифмическая зависимость диаметра от длительности (Рисунок 3.5в), однако при переключении импульсами длиннее 10 с зависимость становилась линейной (Рисунок 3.5в на вставке).

Описанные особенности эволюции изолированных доменов в пленках в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом были отнесены за счет наличия изолирующего слоя  $\text{SiO}_2$  между монокристаллической пленкой и заземленным электродом, приводящего к неэффективности внешнего экранирования деполяризующего поля.

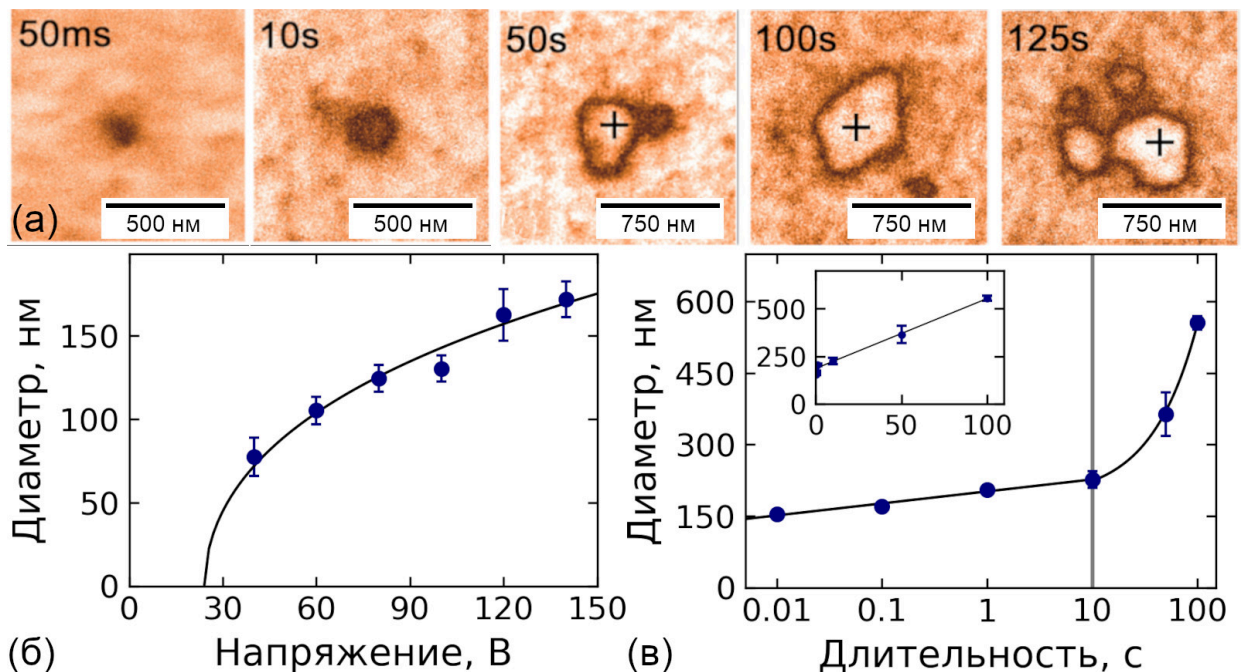


Рисунок 3.5 Кинетика доменов в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом. (а) Типичная форма доменов для различных длительностей импульса (напряжение 120 В) переключающего импульса. Зависимость эффективного размера при различной влажности от (б) амплитуды (длительность 10 с) и (в) длительности переключающего импульса (напряжение 120 В). На вставке в (в)

зависимость эффективного диаметра от длительности переключающего импульса с линейным масштабом оси.

Обнаружен постепенный распад изолированного домена на группу неупорядоченных нанодоменов при частичном «поэтапном обратном переключении» (Рисунок 3.6), что свидетельствует о существовании зубчатой ЗДС в объеме пленки.

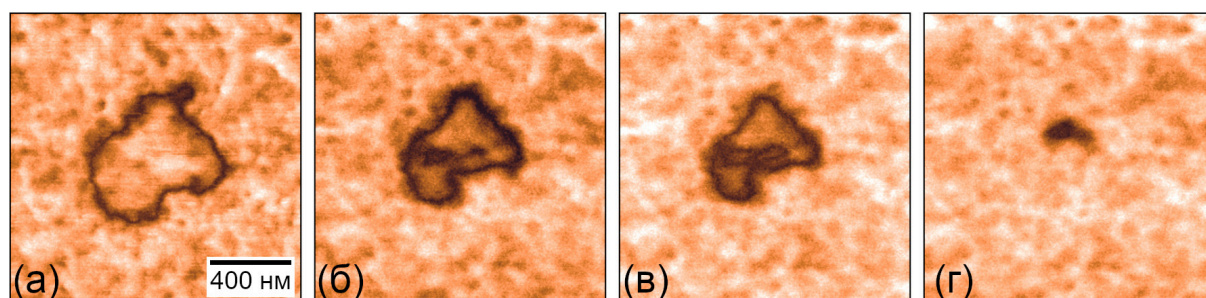


Рисунок 3.6: СМПО визуализация поэтапного обратного переключения в LNOI с диэлектрическим слоем и металлическим электродом (а) после переключения, а также после различного количества сканирований: (б) 3, (в) 5, (г) 9. Напряжение -15 В.

#### 3.1.4. Механизмы роста доменов

Проведенные исследования позволили выявить три механизма роста доменов в тонких пластинах и пленках.

В тонких пластинах LN с полярной ориентацией наблюдается рост изолированного шестиугольного домена на поверхности, имеющего коническую форму в объеме (Рисунок 3.7а). Аналогичная форма доменов наблюдается при переключении в однородном поле и связывается с ростом за счет бокового движения доменных стенок (генерация ступеней) и прямым прорастанием (движение кинков – заряженных концов ступени) [107].

В тонких пленках в LNOI с электродом на поверхности растет изолированный домен с формой скругленного шестиугольника и волнообразными доменными стенками, а в объеме формируется зубчатая ЗДС (Рисунок 3.7б). Подобная форма домена в объеме связывается с ростом за счет формирования и прямого прорастания доменных зубцов на ЗДС [137]. В этом случае ограниченность прямого прорастания и быстрый боковой рост приводят в тонких пленках приводят к образованию доменов с аномальным

наклоном доменных стенок [138]. Увеличение наклона внешней стенки при росте вызывает увеличение деполяризующего поля и образование нового конического домена (зубца) непосредственно на ЗДС при превышении полем порогового значения для внутриобъемного зародышеобразования. Сформировавшийся конический домен прорастает в полярном направлении за счет генерации ступеней и движения кинков, что уменьшает средний наклон ЗДС. Циклическое повторение процесса приводит к формированию зубчатой ЗДС в объеме пленки.

В тонких пленках в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом на поверхности вблизи растущего изолированного домена образуются нанодомены и при слиянии с ними домен приобретает неправильную форму. Появление таких изолированных нанодоменов вблизи домена связывается с эффектом коррелированного зародышеобразования (Рисунок 3.7в) [32]. В этом случае на поверхности впереди движущейся доменной стенки из-за существования локального максимума переключающего поля на расстояниях порядка толщины собственного диэлектрического слоя формируются нанодомены, которые в процессе роста сливаются с основным доменом. Расстояние между нанодоменами и основным доменом варьируется в диапазоне от 100 до 500 нм. Существенные различия в размерах и положении нанодоменов свидетельствуют о наличии точечных дефектов в пленке. Слияние основного домена с нанодоменами ускоряет его рост, что приводит к появлению линейной зависимости эффективного диаметра от длительности импульса для больших доменов, создаваемыми импульсами длиннее 10 с (Рисунок 3.5в). В результате процесса слияния в объеме пленки формируется зубчатая заряженная доменная стенка.



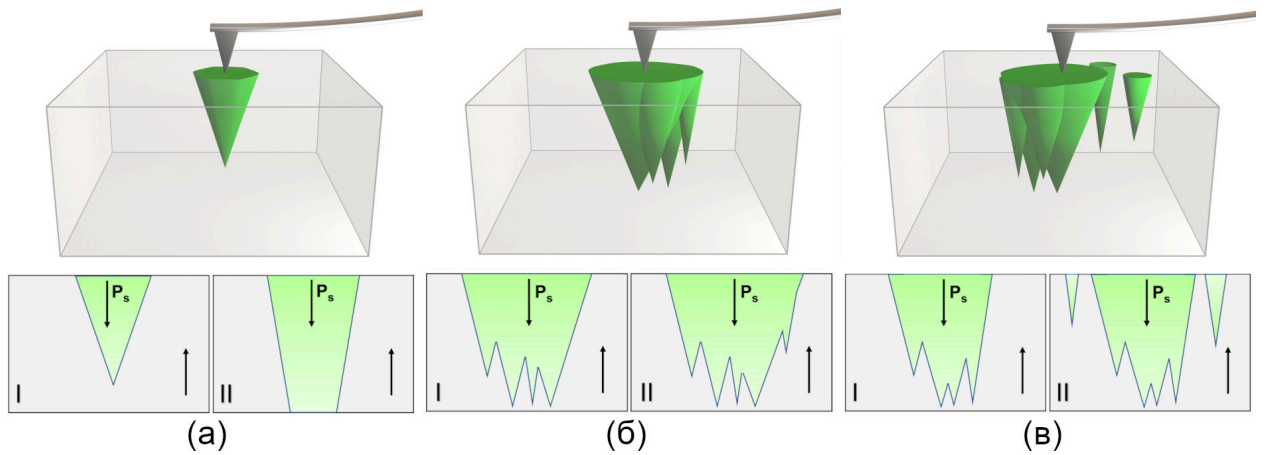


Рисунок 3.7 Структура и механизмы роста доменов: (а) за счет прямого прорастания и бокового движения доменных стенок, (б) за счет формирования на заряженной доменной стенке зубцов и их роста вдоль полярной оси, (в) за счет коррелированного зародышеобразования.

### 3.2. Влияние влажности на рост доменов

Выявлены существенные различия влияния относительной влажности (RH) на рост доменов в исследуемых образцах. В тонких пластинах LN и в тонких пленках в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом увеличение влажности выше 20% приводило к существенному уменьшению размеров создаваемых доменов (Рисунок 3.8а,в), в то время как в тонких пленках в LNOI с электродом наблюдался сверхлинейный рост диаметра домена с RH (Рисунок 3.8б).

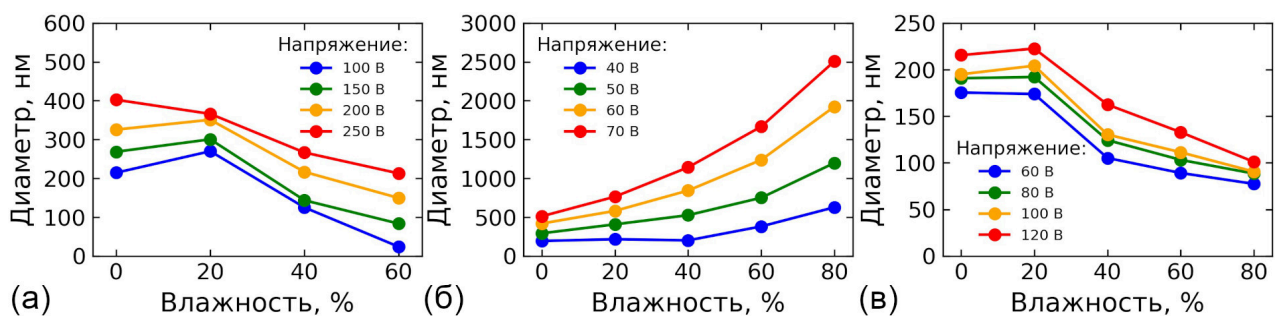


Рисунок 3.8 Зависимость эффективного диаметра домена от влажности (а) в тонких пластинах LN, (б) в тонкой пленке LNOI с электродом, (в) в тонкой пленке LNOI с диэлектрическим слоем и электродом.

Диаметр изолированных доменов, создаваемых в пленках в LNOI с электродом, достигал 2–3 мкм, тогда как в пленках в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом и пластинах LN диаметр доменов не превышал 500 нм.

Различный характер измеренных зависимостей связывается различным влиянием RH на рост больших и малых доменов.

Известно, что повышение относительной влажности приводит к адсорбции воды на поверхность образца и формированию (а) водного мениска у контакта зонд – образец, (б) сплошного адсорбционного тонкого слоя воды на поверхности образца при высоких RH [98,99,139].

Сплошной слой воды, образующийся на поверхности при  $RH > 50\%$ , играет роль верхнего электрода, сопротивление которого уменьшается при увеличении влажности. При этом скорость бокового движения доменной стенки контролируется током переключения, необходимым для внешнего экранирования деполяризующих полей на полярной плоскости [102].

Для выявления влияния формирования мениска на рост доменов проведен расчет распределения полярной компоненты электрического поля, создаваемого зондом, вблизи контакта с поверхностью образца в зависимости от размеров мениска методом конечных элементов (Рисунок 3.9).

Задача решалась в рамках электростатического модуля Comsol Multiphysics. Зонд представлялся в виде конуса с углом наклона 10 градусов. Радиус контакта зонд-образец составлял 50 нм. Образец являлся слоистой структуры, состоящей из пленки LN с полярной ориентацией и диэлектрической проницаемостью  $\epsilon = (30,30,80)$ , толщина верхнего диэлектрического зазора составляла 10 нм, а его диэлектрическая проницаемость  $\epsilon = 12$ . Под пленкой располагался слой  $\text{SiO}_2$  толщиной 1 мкм с  $\epsilon = 12$  заземленный снизу. Диэлектрическая проницаемость водного мениска в точке контакта зонд-образец составляла  $\epsilon = 80$ , радиус мениска ( $R_M$ ) варьировался от 0 до 200 нм (Рисунок 3.9).

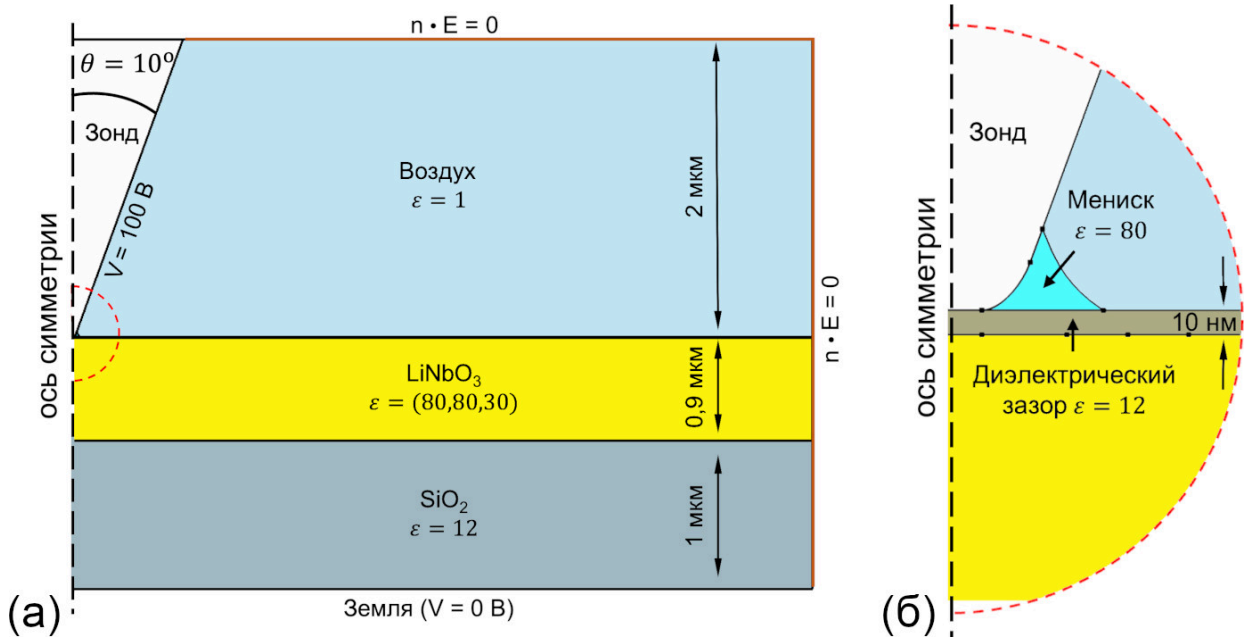


Рисунок 3.9 Геометрия задачи при расчете распределения полярной компоненты электрического поля вблизи контакта зонд образец в зависимости от размера водного мениска.

Полученные из моделирования данные свидетельствуют, что появление водного мениска способствует делокализации электрического поля (Рисунок 3.10а), что приводит к уменьшению его величины в непосредственной близости от зонда и увеличению на больших расстояниях от точки контакта (Рисунок 3.10б).

Скорость движения доменной стенки определяется величиной превышения полярной компоненты создаваемого зондом электрического поля ( $E_{ext,z}$ ) над некоторым пороговым значением ( $E_{th}$ ):

$$\vartheta_{DW} = \mu(E_{ext,z} - E_{th}) \quad (3.3)$$

где  $\mu$  – подвижность доменной стенки.

Для пластины LN и пленки в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом, где превышение  $E_{ext,z}$  над  $E_{th}$  не столь значительно, о чем свидетельствует малый размер создаваемых доменов, уменьшение полярной компоненты поля вблизи зонда приводит к замедлению движения доменной стенки, поэтому размер доменов с ростом влажности уменьшается. С другой стороны, в пленках в LNOI с электродом  $E_{ext,z} \gg E_{th}$  и, следовательно, уменьшение  $E_{ext,z}$  вблизи зонда слабо влияет на рост доменов. При этом

увеличение поля вдали от зонда способствует ускорению движения доменных стенок создаваемых больших доменов и, следовательно, увеличению их диаметра с ростом RH.

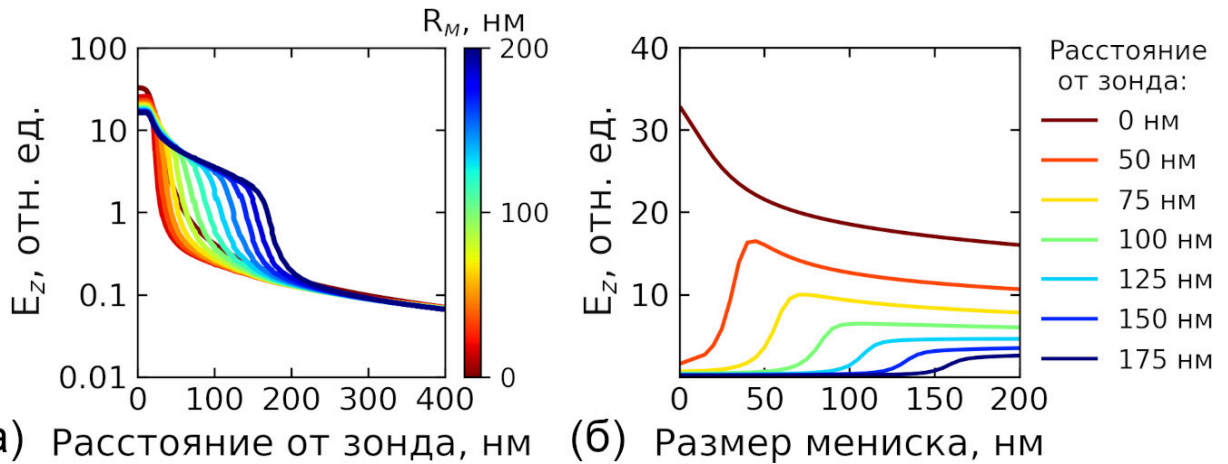


Рисунок 3.10 Зависимости (а) полярной компоненты переключающего поля от расстояния до зонда для различных радиусов мениска и (б) полярной компоненты поля от радиуса мениска на различном расстоянии от зонда.

### 3.3. Взаимодействие и стабильность доменов

Для исследования взаимодействия между изолированными доменами в тонких пластинах LN и тонких пленках в LNOI создавались массивы доменов с различными периодами при RH = 0%. Периоды субмикронных изолированных доменов изменялись от 2 мкм до 300 нм в тонкой пластине LN и от 300 нм до 150 нм в тонких пленках в LNOI.

В тонкой пластине LN наблюдалось плавное уменьшение эффективного диаметра домена с уменьшением периода, связываемое с взаимодействием между стенками соседних доменов (Рисунок 3.11). Для изолированных доменов в массиве с периодом 300 нм было характерно изменение формы (Рисунок 3.11г).

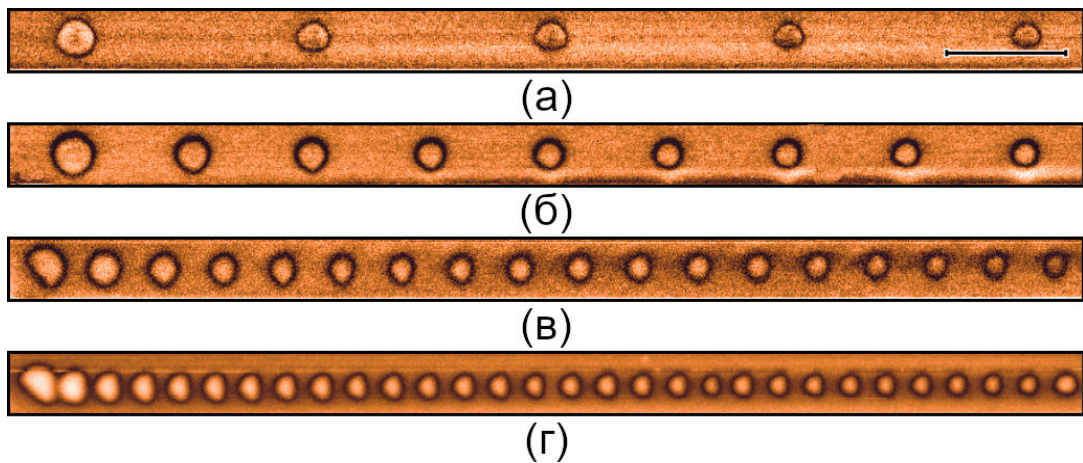


Рисунок 3.11 СМПО визуализация массивов доменов, записанных в тонкой пластине LN с периодами (а) 2 мкм, (б) 1 мкм, (в) 500 нм, (г) 300 нм. Длина масштабного отрезка 1 мкм

В пленках в LNOI с электродом размер и форма изолированных доменов не изменялись вплоть до их слияния между собой при уменьшении периода массива (Рисунок 3.12а-в)

В пленках в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом слабое взаимодействие между доменными стенками приводило к уменьшению эффективного диаметра доменов от 160 до 150 нм (~6%) при уменьшении периода массива (Рисунок 3.12г-е).

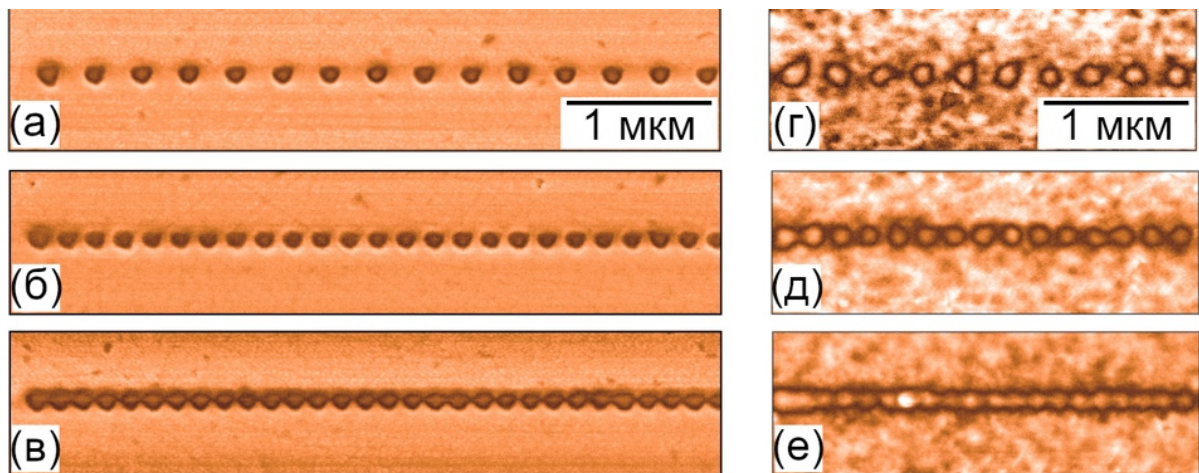


Рисунок 3.12. СМПО визуализация массивов доменов в пленках в LNOI (а-в) с электродом и (г-е) с диэлектрическим слоем и электродом с периодами: (а,г) 300 нм, (б,д) 200 нм, (в,е) 150 нм.

Полученные результаты свидетельствуют том, что с уменьшением толщины образца уменьшается междоменное взаимодействие. Практически полное отсутствие взаимодействия между доменами в пленках в LNOI

связывается эффективным объемным экранированием деполяризующего поля за счет инъекции заряда и повышенной объемной проводимости.

Отсутствие заметных изменений в форме и размерах доменов через 24 часа для тонких пластин LN (Рисунок 3.13а). и через 17 часов для пленок в LNOI (Рисунок 3.13б,в) подтверждает стабильность доменной структуры. Полученный результат качественно отличается от наблюдавшегося ранее значительного изменения формы и размеров доменов в пленках в LNOI без электрода [132]. Следовательно, наличие нижнего электрода в LNOI обеспечивает стабильность доменных структур.

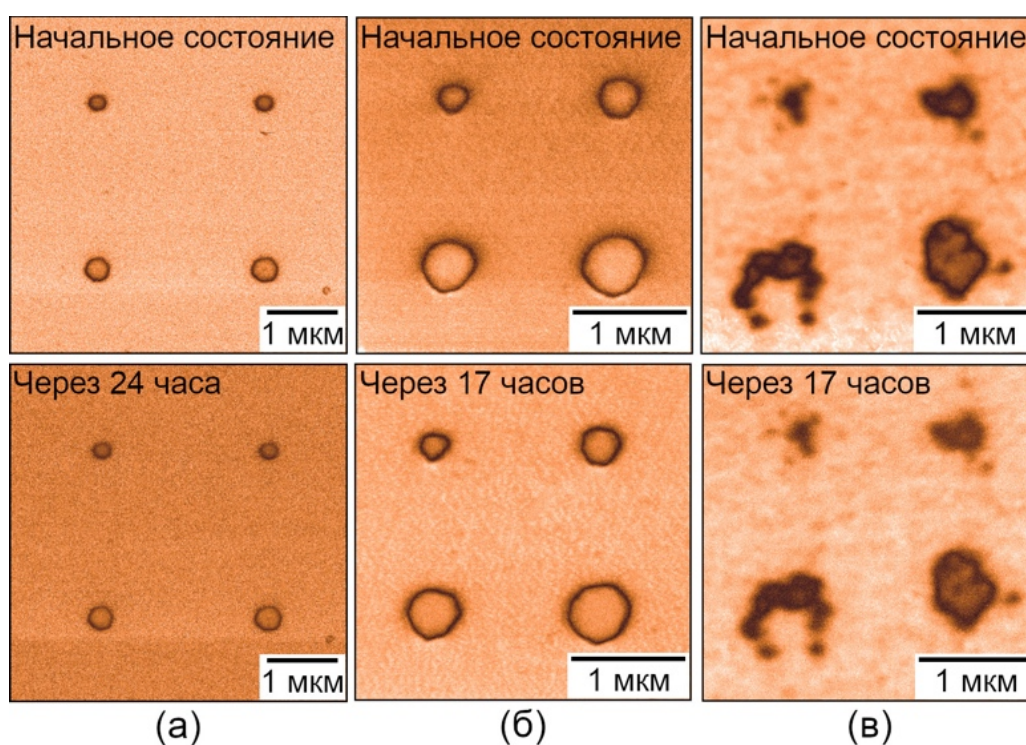


Рисунок 3.13. СМПО визуализация доменных структур в (а) тонких пластинах LN, (б) LNOI с электродом, (в) LNOI с диэлектрическим слоем.

### 3.4. Краткие выводы

На основе результатов, полученных с помощью локального переключения поляризации в пластинах LN и тонких пленках в LNOI с полярной ориентацией можно сделать следующие краткие выводы:

1. Выявлено образование зубчатой доменной стенки в объеме при локальном переключении зондом СЗМ в тонких пленках ниобата лития с полярной ориентацией.

2. Рост доменов в тонких пленках ниобата лития с полярной ориентацией, в отличие от пластин LN, обусловлен формированием зубцов на заряженной доменной стенке, а при наличии диэлектрического слоя - образованием изолированных нанодоменов за счет коррелированного зародышеобразования.

3. Увеличение скорости роста доменов в пленках LN и уменьшение скорости в пластинах LN и в пленках LN с диэлектрическим слоем при увеличении относительной влажности, обусловлено изменением размеров водного мениска в точке контакта зонд-образец.

4. Слабое взаимодействие между изолированными доменами в пленках LN связано с эффективным объемным экранированием деполяризующего поля за счет инжекции заряда и повышенной объемной проводимости.

## Глава 4. Особенности эволюции изолированных доменов при локальном переключении поляризации на неполярных срезах монокристаллических пластин и тонких пленок ниобата лития

### 4.1. Форма и механизм роста доменов

Было проведено детальное сравнение изменений в форме и размерах изолированных доменов в пластинах LN и тонких пленках в LNOI с неполярной ориентацией.

#### 4.1.1. Пластины LN, вырезанные параллельно полярной оси

Произведено локальное переключение поляризации положительными и отрицательными импульсами в пластинах LN с неполярной ориентацией толщиной 500 мкм. При переключении положительными импульсами обнаружено формирование клиновидных доменов (Рисунок 4.1а), в то время как при переключении поляризации отрицательными импульсами создавались узкие иглообразные домены (Рисунок 4.1б). Форма доменов не зависела от величины прикладываемого напряжения.

Исследованы зависимости ширины основания и длины доменов от приложенного напряжения. Длина создаваемых доменов линейно увеличивается с напряжением для импульсов обеих полярностей (Рисунок 4.1в), что типично для пластин LN [107]. Ширина основания домена ( $w$ ) зависит от распределения полярной компоненты электрического поля вблизи зонда и может быть определена как [107]:

$$w(V_{tip}) = 2 \sqrt{b \frac{V_{tip}}{E_{th}} - R_{tip}^2} \quad (4.1)$$

где  $b = \frac{C}{3\sqrt{3}\pi(1+\varepsilon)\varepsilon_0}$ ,  $C$  – емкость зонда,  $R_{tip}$  – радиус закругления зонда,  $E_{th}$  – пороговое поле,  $V_{tip}$  – прикладываемое напряжение. Уравнение 4.1 было успешно применено для аппроксимации зависимости ширины основания от напряжения при переключении положительными импульсами. В то же время, ширина основания доменов, созданных отрицательными импульсами, составляла  $\sim 400$  нм и не изменялась во всем диапазоне используемых



напряжений (Рисунок 4.1г). Аспектное соотношение определялось как отношение длины домена к ширине его основания, что обуславливало корневую и линейную зависимости аспектного соотношения от напряжения для положительных и отрицательных импульсов, соответственно (Рисунок 4.1д).

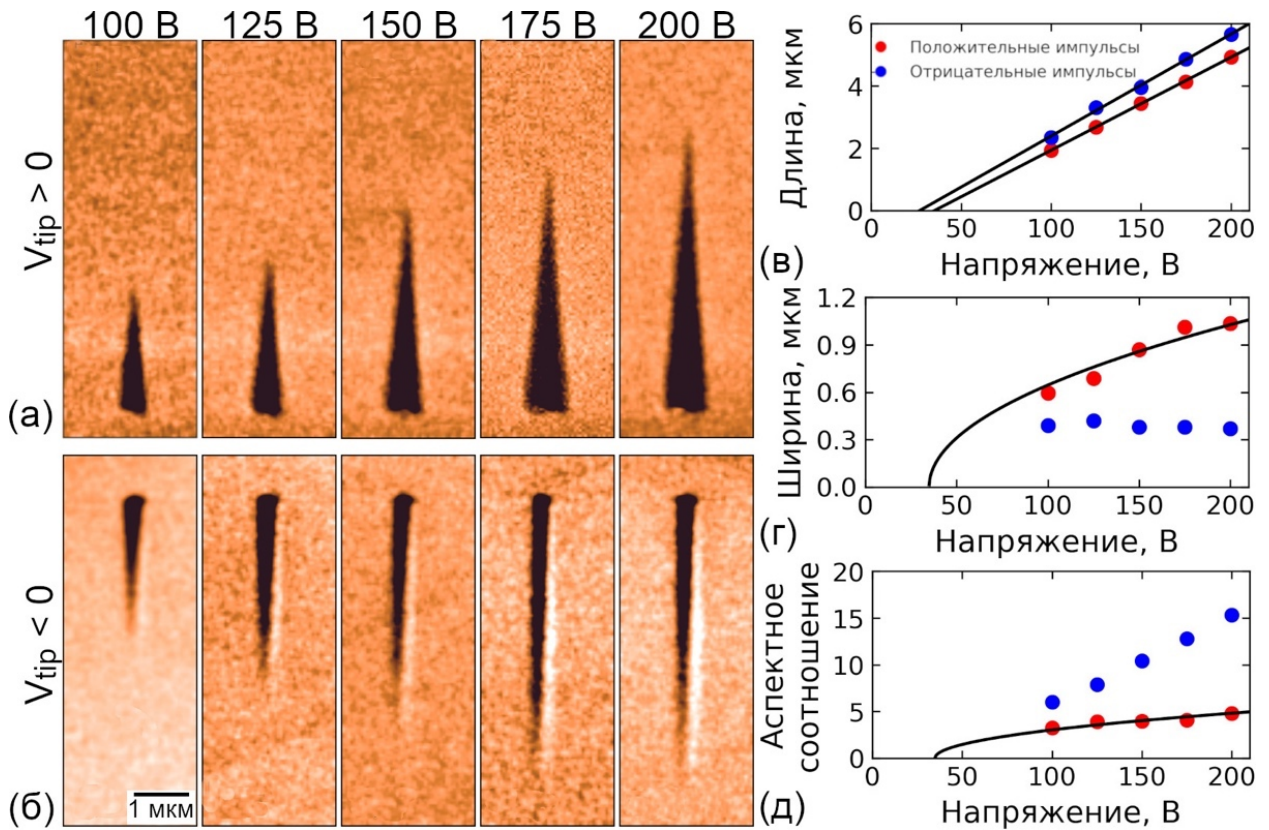


Рисунок 4.1 Рост изолированных доменов в пластинах LN с неполярной ориентацией при локальном переключении (а) положительными и (б) отрицательными импульсами. Зависимости (в) длины, (г) ширины и (д) аспектного соотношения доменов от напряжения. Длительность импульсов 5 с. RH = 30%.

#### 4.1.2. Тонкие пленки в LNOI

Обнаружено, что домены, создаваемые отрицательными импульсами в пленках в LNOI с неполярной ориентацией, имеют клиновидную форму с закругленным основанием (Рисунок 4.2б). Для доменов, переключенных положительными импульсами, характерна сложная форма с расширенным основанием и несколькими узкими зубцами, ориентированными в полярном направлении (Рисунок 4.2а), при этом количество зубцов уменьшалось с ростом напряжения.

Длина доменов линейно зависела от величины напряжения для импульсов обеих полярностей (Рисунок 4.2в). Причем длина доменов, созданных положительными импульсами, меньше, чем доменов, созданных отрицательными импульсами. Зависимости ширины основания доменов, созданных импульсами обеих полярностей, были успешно аппроксимированы уравнением 4.1 (Рисунок 4.2г). Аспектное соотношение доменов изменялось пропорционально  $\sqrt{V_{tip}}$  (Рисунок 4.2д).

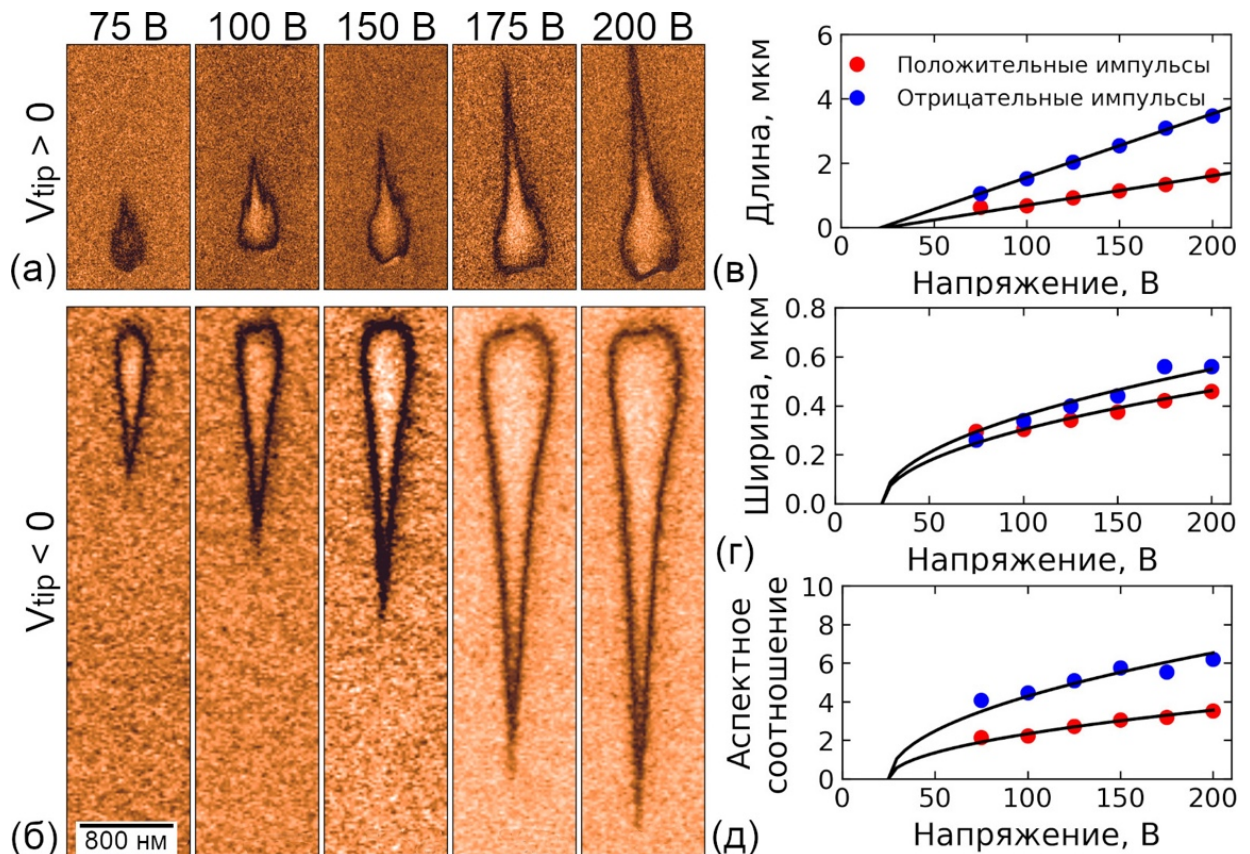


Рисунок 4.2 Рост изолированных доменов в тонких пленках с неполярной ориентацией в LNOI при переключении (а) положительными и (б) отрицательными импульсами. Зависимости (в) длины, (г) ширины и (д) аспектного соотношения доменов от напряжения. Длительность импульсов 5 с. RH = 30%.

#### 4.1.3. Механизм роста

Для объяснения различий в форме доменов и зависимостях их эффективного диаметра от напряжения в пленках в LNOI и пластинах LN с неполярной ориентацией использовался кинетический подход [107]. В рамках кинетического подхода рост доменов происходит под действием полярной

компоненты электрического поля  $E_{loc,z}$  за счет генерации элементарных ступеней с заряженными кинками и движения этих кинков вдоль доменной стенки. Генерация элементарных ступеней на доменной стенке происходит вблизи зонда, где  $E_{loc,z}$  представляет собой сумму полярных компонент внешнего поля, создаваемого зондом СЗМ, ( $E_{ext,z}$ ), деполяризующего поля ( $E_{dep,z}$ ) и поля экранирования ( $E_{scr,z}$ ) (Уравнение 1.10).

Внешнее поле  $E_{ext,z}$  быстро уменьшается при удалении от зонда и на расстоянии  $\sim 1$  мкм становится близким к нулю. Поэтому удлинение доменов на больших расстояниях от зонда СЗМ при прямом прорастании происходит под действием частично экранированного  $E_{dep,z}$ , создаваемого связанными зарядами кинков (Уравнение 1.11).

Экранирование замедляет движение кинков и препятствует спонтанному обратному переключению доменов после завершения импульса. Эффективность экранирования зависит от проводимости ЗДС и объемной проводимости. При локальном переключении поляризации положительными импульсами формируются домены с заряженными доменными стенками типа «голова к голове» (Рисунок 4.3а), а при использовании отрицательных импульсов домены с ЗДС типа «хвост к хвосту» (Рисунок 4.3б). Было показано, что проводимость ЗДС типа «голова к голове» больше чем на порядок превосходит проводимость ЗДС типа «хвост-к-хвосту» [140]. Для пленок в LNOI характерна повышенная проводимость, составляющая при комнатной температуре  $\sim 10^{-13}$  См/мм, что на пять порядков превосходит проводимость пластин LN [141,142]. Высокая проводимость пленок связывалась с наличием в них точечных дефектов, индуцированных в процессе ионной имплантации и лишь частично удаленных при последующем отжиге.

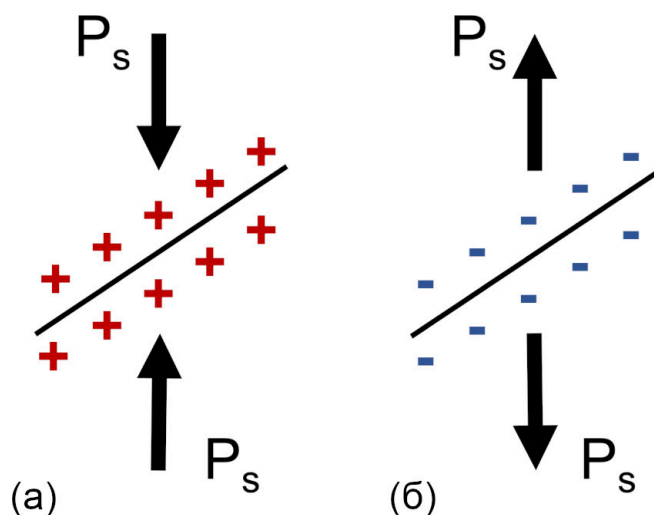


Рисунок 4.3 Схематичное представление заряженных доменных стенок типа (а) «голова к голове» и (б) «хвост к хвосту»

Низкая проводимость пластин LN способствует быстрому росту клиновидных доменов в них. Стабильность созданных доменов при переключении положительными импульсами обеспечивается высокой проводимостью ЗДС типа «голова-к-голове», обеспечивающей экранирование  $E_{dep,z}$  и препятствующей самопроизвольному обратному переключению.

В то же время, формирование узких иглообразных доменов при переключении отрицательными импульсами в пластинах LN, связывается с самопроизвольным частичным обратным переключением после завершения импульса из-за неэффективного экранирования. Ширина наблюдаемого остаточного домена определяется взаимодействием сближающихся при обратном переключении ЗДС и не зависит от величины прикладываемого напряжения (Рисунок 4.1г).

Более эффективное экранирование в пленках в LNOI при переключении положительными импульсами, за счет повышенной объемной проводимости и проводимости ЗДС типа «голова к голове», приводило к уменьшению, создаваемого кинками  $E_{dep,z}$  и замедлению их движения при переключении положительными импульсами. В результате чего наблюдалось формирование доменов с расширенным основанием и узкими зубцами, возникновение которых вызвано локальным увеличением наклона ЗДС.

Клиновидные домены в пленках в LNOI, создаваемые отрицательными импульсами, имеют ЗДС типа «хвост-к-хвосту» с низкой проводимостью, что обеспечивает их быстрое удлинение. Высокая объемная проводимость тонких пленок препятствует уменьшению ширины за счет самопроизвольного обратного переключению.

#### ***4.2. Влияние влажности на рост доменов***

Было исследовано влияние относительной влажности на рост и форму доменов в тонких пленках с неполярной ориентацией в LNOI при переключении отрицательными импульсами. Выявлены три области RH, для которых было характерно формирование доменов различной формы (Рисунок 4.4).

1. При  $RH < 45\%$  наблюдалось образование клиновидных доменов. Длина доменов практически не изменялась с ростом влажности в данном диапазоне. В то же время, обнаружен быстрый рост ширины основания доменов с увеличением RH, что приводило к уменьшению аспектного соотношения (Рисунок 4.4б-г).

2. При  $45 < RH < 60\%$  обнаружено формирование доменов с расширенным основанием. Для данного диапазона было характерно уменьшение длины доменов с увеличением влажности. При этом ширина основания доменов оставалась практически неизменной, что приводило к уменьшению аспектного соотношения (Рисунок 4.4б-г).

3. При  $RH > 60\%$  форма доменов оставалась прежней. Наблюдалось быстрое уменьшение ширины основания доменов с ростом RH. Длина доменов уменьшалась, а аспектное соотношение увеличивалось с увеличением влажности (Рисунок 4.4б-г).

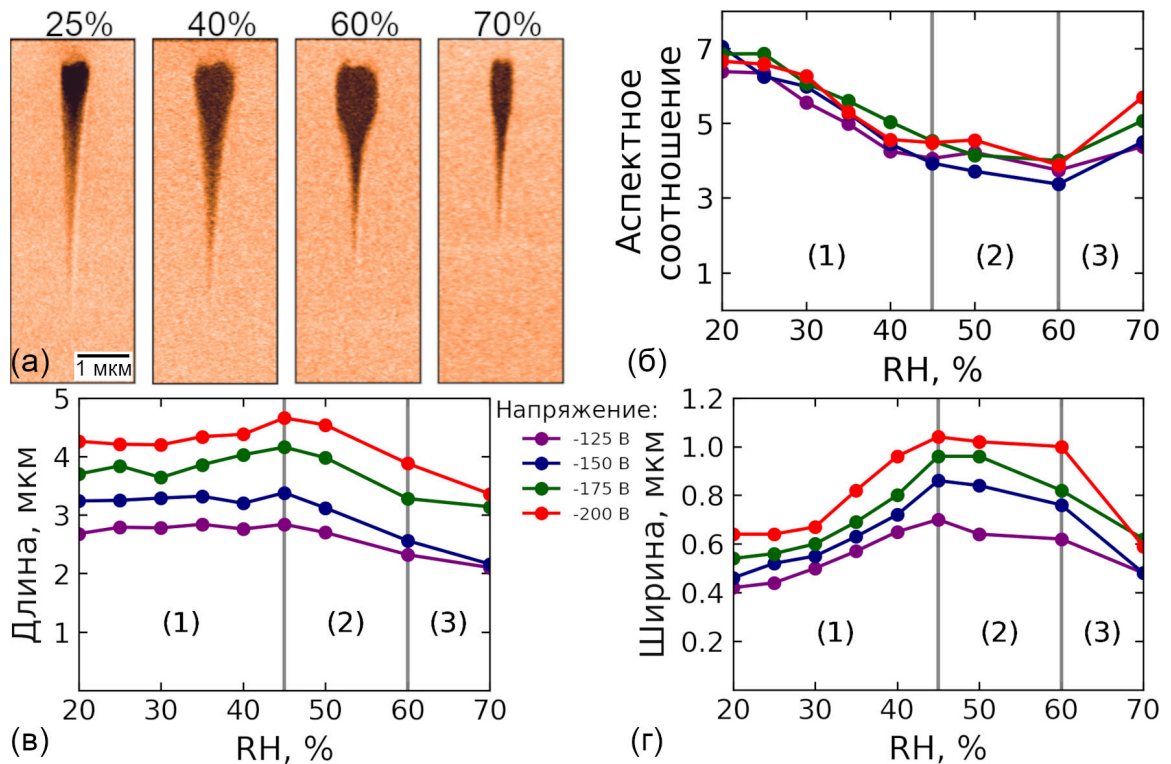


Рисунок 4.4 (а) СМПО визуализация изолированных доменов, созданных в тонких пленках в LNOI при различном RH и напряжении -200 В. Зависимости от RH: (б) аспектного соотношения, (в) длины и (г) ширины доменов при различном напряжении. Длительность импульсов 1 с.

Наблюдаемое изменение формы доменов с ростом RH связывалось с формированием и ростом водного мениска вблизи контакта зонд-образец. Увеличение площади контакта с ростом мениска при  $RH < 45\%$  приводило к делокализации  $E_{ext,z}$ , что способствовало увеличению ширины основания доменов. Дальнейшее повышение влажности приводило к улучшению эффективности внешнего экранирования  $E_{dep,z}$  и вызывало изменение формы домена. Резкое уменьшение ширины основания при  $RH > 60\%$  связывалось с существенным уменьшением  $E_{ext,z}$  из-за сильной делокализации.

### 4.3. Переключение к электроду в пленках в LNOI

Был исследован рост домена к полосовому заземленному электроду в пленках с неполярной ориентацией в LNOI. Изолированные домены создавались отрицательными импульсами с различным напряжением и длительностью. Расстояние от зонда до электрода составляло 4 мкм. Визуализация доменов осуществлялась при помощи СМПО и метода

каналирования СЭМ (Рисунок 4.5а-г). Исследование роста доменов к заземленному электроду позволяет изучить переход между стадиями процесса переключения от «прямого прорастания домена» к «боковому движению доменных стенок».

Наблюдаемые неоднородности контрастов в изображениях, полученных с помощью СМПО и СЭМ, связывались с локальной неоднородностью глубины переключенных доменов и использовались для реконструкции их роста. Более темные области, находящиеся преимущественно вблизи зонда и электрода, соответствуют более глубоким доменам.

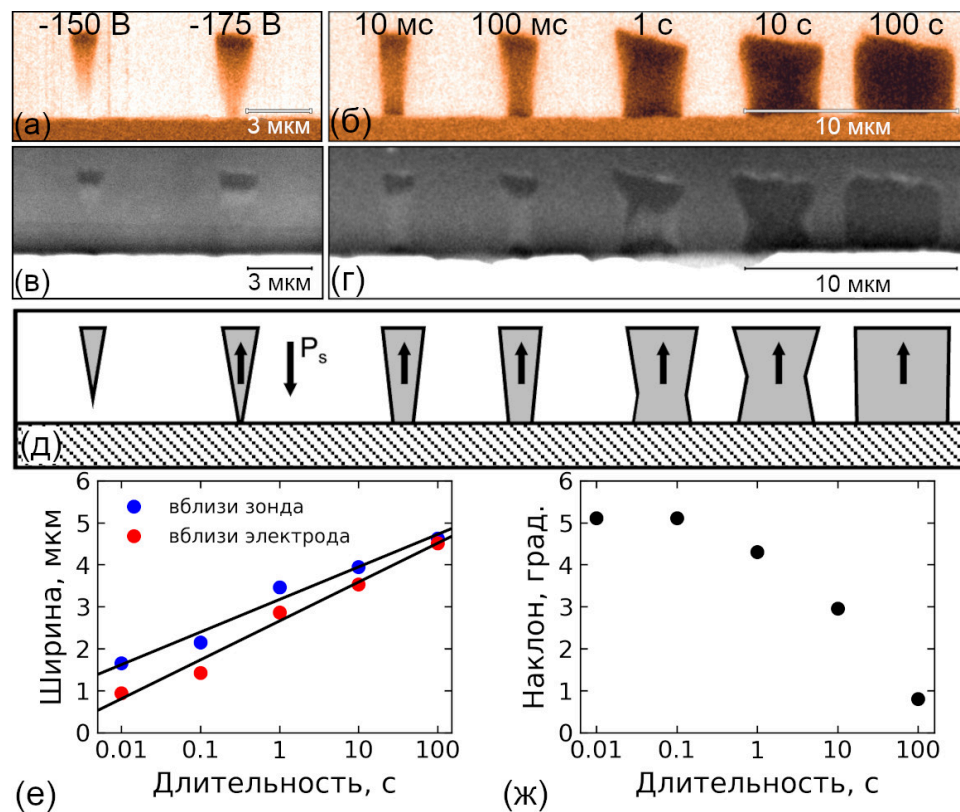


Рисунок 4.5 Рост доменов к полосовому электроду. (а,б) СМПО и (в,г) СЭМ визуализация доменов, созданных импульсами с различными (а,в) напряжениями (длительность 1 с) и (б,г) длительностями (напряжение -175 В). (д) Схематичное представление созданных доменов. Зависимость (ж) ширины оснований доменов и (е) угла наклона ЗДС от длительности импульса

Процесс переключения поляризации начинался с прорастания клиновидного домена, обладающего ЗДС типа «хвост к хвосту» к электроду. После касания доменом электрода наблюдался встречный рост домена от электрода к зонду с образованием ЗДС типа «голова к голове», что приводило

к возникновению доменов в форме «песочных часов» (Рисунок 4.5д). Дальнейший рост домена приводил к постепенному уменьшению наклона ЗДС (Рисунок 4.5ж) и формированию полосового домена с нейтральными доменными стенками. Ширины оснований создаваемых доменов вблизи электрода и зонда увеличивались пропорционально логарифму длительности импульса (Рисунок 4.5е), что соответствует результатам, полученным для изолированных доменов в LNOI с полярной ориентацией (Рисунок 3.3в).

#### 4.4. Самоорганизация в доменных структурах

Исследовалось формирование доменов при сканировании вдоль  $Y$  направления зондом с приложенным к нему постоянным напряжением. Обнаружена сильная зависимость формы создаваемых доменов от RH. При сканировании в атмосфере сухого азота и при RH = 60% наблюдалось формирование иглообразных одиночных доменов (Рисунок 4.6а,в). Выявлено формирование гребенчатого домена с длинными узкими зубцами, ориентированными в полярном направлении в узком диапазоне влажностей вблизи RH = 25% (Рисунок 4.6б). Основной период чередования зубцов составлял 100–110 нм. Ранее подобные эффекты наблюдались на неполярных срезах пластин LN [97].

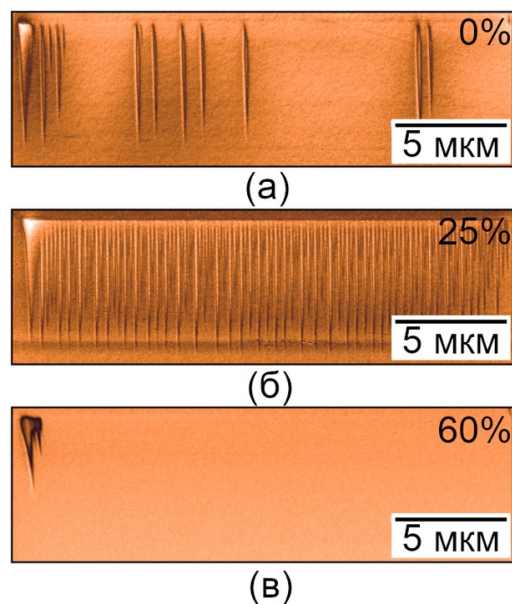


Рисунок 4.6 СМПО визуализация доменных структур, созданных сканированием вдоль  $Y$  оси при различных RH: (а) 0%, (б) 25%, (в) 60%. Напряжение -175 В, скорость 5 мкм/с.



В гребенчатых доменах был выявлен эффект самоорганизации, заключающийся в квазиупорядоченном чередовании длин зубцов (Рисунок 4.7а). Анализ гистограммы распределения длин зубцов в домене позволил разделить их на четырех типа: длинные (Д), средние (С), короткие (К) и очень короткие (ОК) (Рисунок 4.7д).

Для исследования квазиупорядоченого следования зубцов в гребенчатом домене была построена зависимость длины каждого зубца от длины зубца ему предшествующего (график Пуанкаре) (Рисунок 4.7е). Эффект самоорганизации подтверждается образованием кластеров на графике Пуанкаре, соответствующих шести возможным вариантам следования зубцов в гребенчатом домене: Д – ОК, С – ОК, К – ОК, ОК – К, ОК – С, ОК – Д.

Эффект самоорганизации длин зубцов в домене приводил к возникновению участков с кратными увеличениями периода. Выявлено несколько вариантов увеличения периода в гребенчатом домене за счет квазипериодичности в следовании их длин. Наиболее часто наблюдалось увеличение периода в четыре раза (Д-ОК-К-ОК-...) (Рисунок 4.7б). Кроме того, были обнаружены участки с увеличением периода в восемь раз (Д-ОК-К-ОК-С-ОК-К-ОК-) (Рисунок 4.7в) и с хаотическим чередованием длин доменов (Рисунок 4.7г). Эффекты удвоения и учетверения периода ранее были наблюдались в пластинах LN с неполярной ориентацией [97], эффекта увеличения периода в восемь раз ранее не наблюдалось.

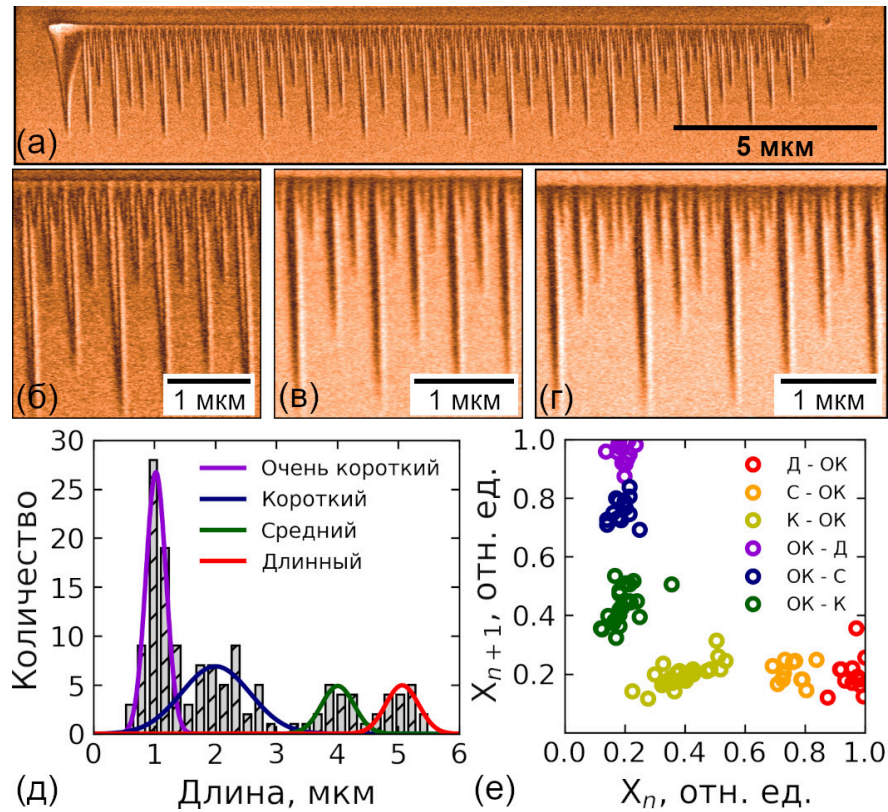


Рисунок 4.7 СМПО визуализация самоорганизованных гребенчатых доменов: (а) общий вид; участки с увеличением периода (б) в 4 раза, (в) в 8 раз и (г) с хаотичным чередованием длин зубцов. (д) Гистограмма распределения длин зубцов, (е) график Пуанкаре для длин зубцов в домене.  $RH = 30\%$ , скорость сканирования 5 мкм/с, напряжение -175 В

Эффект самоорганизации связывался электростатическим взаимодействием между соседними зубцами с ЗДС в гребенчатых доменах. Появление длинного (Д) или среднего (С) зубца замедляет рост последующего, что приводит к образованию короткого (К) или очень короткого (ОК) зубца.

#### 4.5. Краткие выводы

На основе результатов, полученных при локальном переключении поляризации в пластинах LN и тонких пленках в LNOI с неполярной ориентацией можно сделать следующие краткие выводы:

1. Выявленные различия формы и кинетики роста изолированных клиновидных доменов при локальном переключении в пленках и пластинах LN с неполярной ориентацией обусловлены повышенной объемной проводимостью пленок, вызванной ионной имплантацией

2. Изменение формы доменов с ростом RH при переключении в пленках LN с неполярной ориентацией связано с формированием и ростом водного мениска вблизи контакта зонд – образец.

3. Обнаружено самоорганизованное формирование гребневых доменов с упорядоченным чередованием длины зубцов, возникающее из-за взаимодействия заряженных доменных стенок и приводящее к кратному увеличению пространственного периода.

## Глава 5. Формирование регулярных полосовых доменных структур при переключении поляризации зондом сканирующего зондового микроскопа в тонких пленках ниобата лития.

### 5.1. Создание регулярных доменных структур в пленках в LNOI с полярной ориентацией и электродом.

Были изучены возможности создания регулярных структур полосовых доменов с субмикронными периодами в пленках с полярной ориентацией в LNOI с электродом.

#### 5.1.1 Полосовые домены

На первом этапе были исследованы возможности создания полосовых доменов с помощью сканирования вдоль линии с приложением постоянного напряжения к зонду СЗМ.

Были созданы полосовые домены длиной 4 мкм с варьированием прикладываемого напряжения (Рисунок 5.1а) и скорости сканирования (Рисунок 5.1б). Размер доменов характеризовался средней шириной ( $w$ ), оцениваемой по центральному участку домена длиной 3 мкм.

Ширина создаваемого полосового домена определяется распределением полярной компоненты электрического поля вблизи зонда как область, где  $E_{ext,z} > E_{th}$ , аналогично диаметру изолированных доменов (уравнение 3.1). Следовательно, зависимость ширины от напряжения может быть выражена как:

$$w(V_{tip}) = 2a\sqrt{V_{tip}^{2/3} - \frac{R_{tip}^2}{a^2}}, \quad (5.1)$$

где  $a = \sqrt[3]{\frac{CR_{tip}}{2\pi\varepsilon_0(1+\varepsilon)E_{th}}}$ . Уравнение 5.1 было успешно использовано для

аппроксимации экспериментальных данных (Рисунок 5.1в). Обнаружено, что ширина домена уменьшалась пропорционально логарифму с увеличением скорости сканирования (Рисунок 5.1г), что соответствует результатам, полученным для локального переключения изолированных доменов в

исследуемых пленках (Рисунок 3.3в). Оцененное среднеквадратичное отклонение ширины доменов от среднего значения не превышало 15 нм.

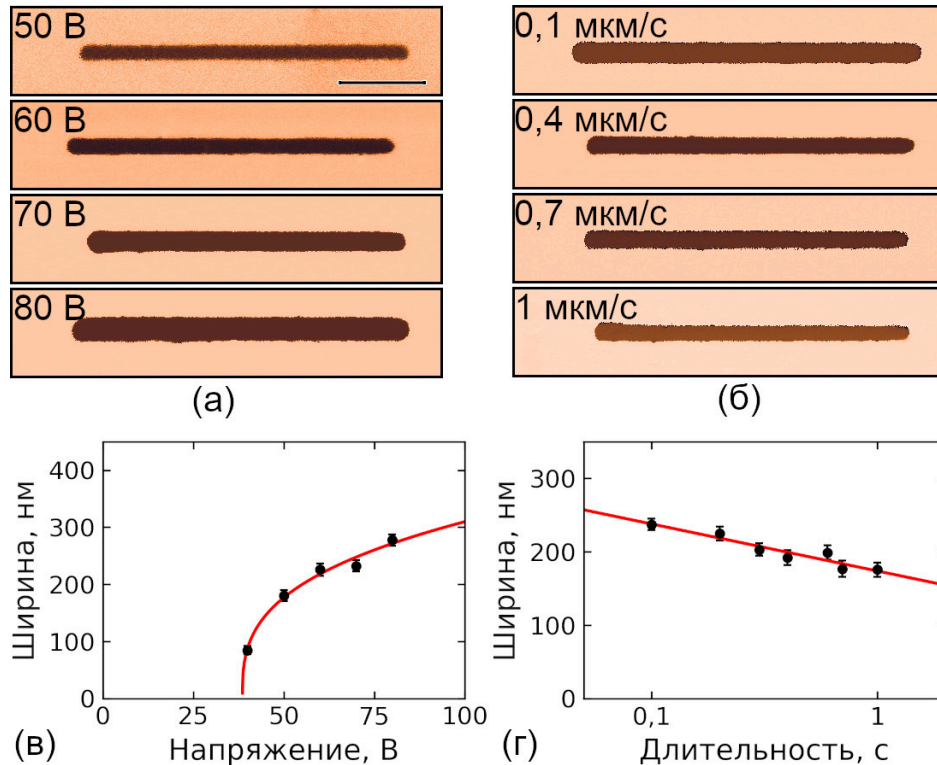


Рисунок 5.1 СМПО визуализация полосовых доменов, созданных (а) сканированием с различными напряжениями и скоростью 0,5 мкм/с, (б) с различными скоростями и напряжением 60 В. Зависимости ширины доменов: (в) от напряжения, (г) от скорости сканирования. Переключенные домены – темные. Длина масштабного отрезка 1 мкм.

### 5.1.2 Регулярные доменные структуры

Были созданы РДС с периодом 300 нм при помощи сканирования с приложением постоянного напряжения к зонду СЗМ при комнатной температуре (Рисунок 5.2а-в). Сквасность созданных структур ( $S$ ) определялась как отношение периода структуры к ширине создаваемых полосовых доменов в ней.

$$S = \frac{w}{P}, \quad (5.2)$$

где  $P$  – период РДС,  $w$  – ширина полосовых доменов.

Экспериментальные получаемые зависимости ширины доменов в РДС от напряжения были аппроксимированы функцией, полученной подстановкой используемого выражения для ширины полосового домена (уравнение 5.1) в

уравнение 5.2 (Рисунок 5.2г). Наблюдаемая зависимость от напряжения позволяет получать близкие к 0,5 значения скважности, обеспечивающие наилучшую эффективность преобразования света [143].

Было выявлено, что с увлечением скорости сканирования скважность РДС уменьшается по логарифмическому закону (Рисунок 5.2д), что соответствует зависимости размера изолированного домена от длительности импульса при локальном переключении (Рисунок 3.3в).

Дисперсия скважности не превышала 3% от периода.

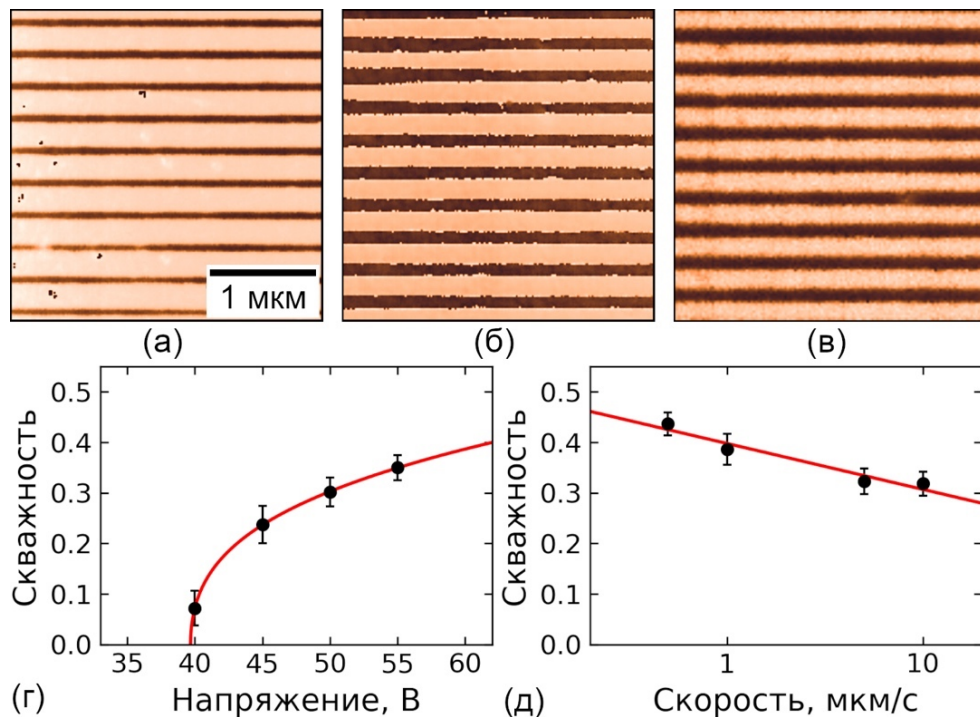


Рисунок 5.2 СМПО визуализация РДС с периодом 300 нм, созданных сканированием с приложением напряжения (а) 45 В, (б) 50 В, (в) 55 В и скорости сканирования 5 мкм/с. Зависимости скважности: (г) от напряжения, (д) от скорости сканирования. Переключенные домены – темные.

### 5.1.2 Взаимодействие между полосовыми доменами

Для исследования взаимодействия между полосовыми доменами в пленках в LNOI с электродом были созданы РДС сканированием с приложением постоянного напряжения к зонду СЗМ с постепенным уменьшением периода от 450 нм до 200 нм (Рисунок 5.3а-г).

Были обнаружены три типа зависимости ширины полосовых доменов от периода РДС, обусловленные взаимодействием между доменами (Рисунок 5.3д-ж):

1. «Уширение доменов» при периодах больше 300 нм. Наблюдаемое линейное увеличение ширины и скважности РДС с уменьшением периода связывалось с влиянием поверхностных зарядов, инжектированных при создании предыдущего полосового домена. Подобное поведение ранее наблюдалось при создании РДС сканированием электронным пучком СЭМ [144].
2. «Сужение доменов» при периодах 300–225 нм, характеризующееся линейным уменьшением ширины полосовых доменов и скважности РДС, а также увеличением расстояния между доменами при уменьшении периода. Эффект уменьшения скорости сближения доменных стенок вплоть до их полной остановки перед слиянием доменов был ранее обнаружен и исследован в германате свинца  $Pb_5Ge_3O_{11}$  и молибдате гадолиния  $Gd_2(MoO_4)_3$  [145]. Замедление сближения доменных стенок вызывалось «эффектом запаздывания», возникающим из-за медленного экранирования деполяризующего поля, которое приводит к уменьшению прикладываемого поля на доменных стенках при уменьшении расстояния между ними [145,146].
3. «Слияние доменов» при периодах меньше 225 нм. Дальнейшее уменьшение периода приводило к слиянию соседних полосовых доменов. При этом расстояние между доменными стенками уменьшалось пространственно неоднородно, что приводило к образованию на заключительных стадиях цепей остаточных нанодоменов (Рисунок 5.3г).

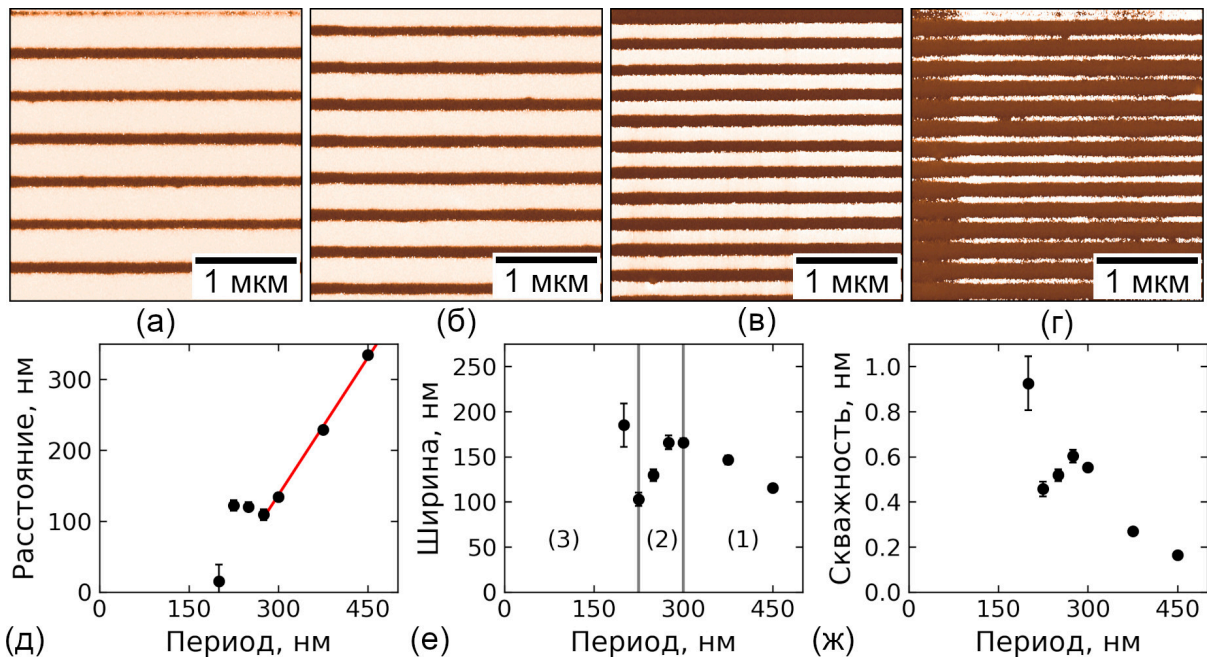


Рисунок 5.3 СМПО визуализация РДС с периодами (а) 450 нм, (б) 375 нм, (в) 250 нм, (г) 200 нм. Зависимости от периода РДС: (д) расстояния между соседними доменами, (е) ширины доменов и (ж) скважности. Переключенные домены - темные. На (е) выделены три типа зависимости ширины доменов от периода.

Для подтверждения описанных механизмов взаимодействия полосовых доменов в РДС было произведено моделирование роста полосового домена с помощью расчета пространственного распределения полярной компоненты электрического поля  $E_{loc,z}$  вблизи существующего частично экранированного полосового домена методом конечных элементов (Рисунок 5.4). Существующий домен задавался как прямоугольная область шириной 120 нм с поверхностной плотностью заряда  $0,05 P_s$  под естественным диэлектрическим слоем толщиной от 2 до 100 нм.



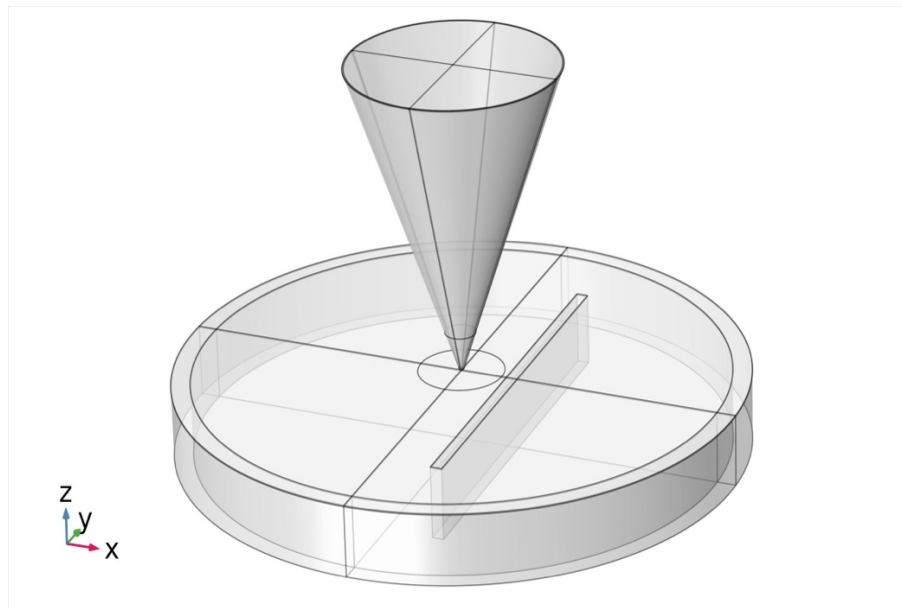


Рисунок 5.4 Геометрия задачи при расчете распределения полярной компоненты электрического поля вблизи полосового домена.

Считалось, что переключение поляризации и формирование нового домена вблизи зонда происходит в области, где рассчитанная  $E_{loc,z}$  превышает пороговое значение 15 кВ/мм. Полученная зависимость ширины создаваемого домена от периода качественно соответствует результатам, наблюдаемым в эксперименте (Рисунок 5.5). Резкое уменьшение ширины создаваемого домена при малых периодах, вызвано влиянием деполяризующего поля существующего полосового домена.

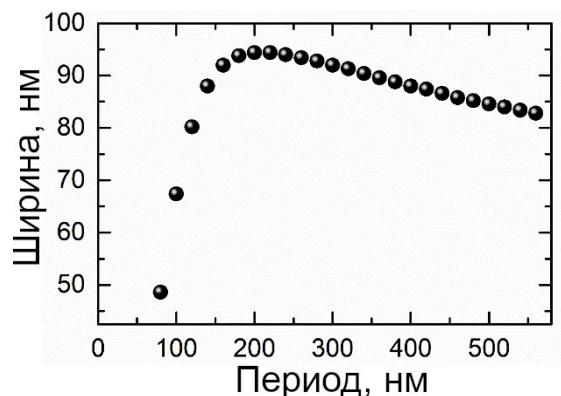


Рисунок 5.5 Моделирование зависимости ширины полосового домена от периода РДС

### 5.1.3 Стабильность регулярных доменных структур

Для исследования стабильности была создана РДС с периодом 300 нм, визуализация которой производилась непосредственно после переключения и

спустя 17 часов при комнатной температуре и влажности 25% (Рисунок 5.6а,б). Видимых изменений в форме и размере доменов в РДС обнаружено не было, что подтверждает ее стабильность.

Возможность корректировки созданной структуры с помощью частичного удаления была продемонстрирована при помощи сканирования с постоянным напряжением квадратной области внутри созданной РДС (Рисунок 5.6в,г). Исчезновение доменной структуры происходило не только в области сканирования, но и на расстоянии около 300 нм от ее края. Процесс «стирания» доменной структуры можно контролировать изменением напряжения и скорости сканирования. Локальное удаление созданной доменной структуры может использоваться для коррекции РДС.

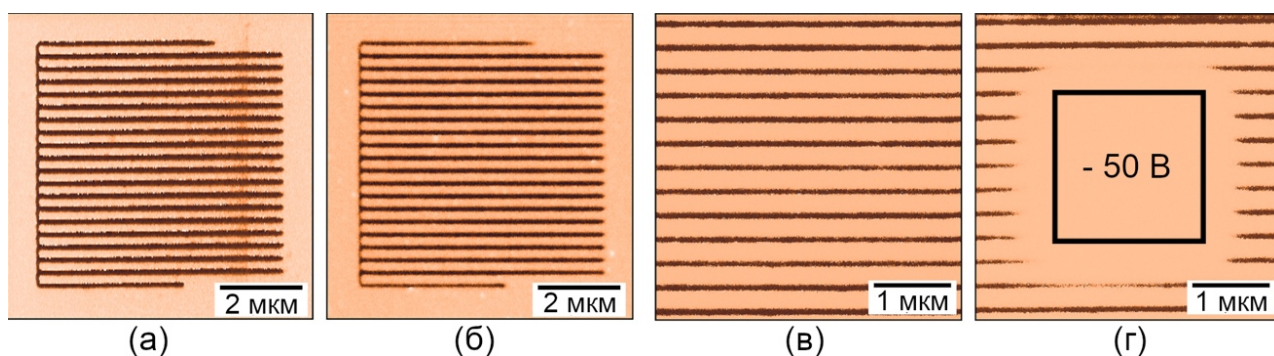


Рисунок 5.6 СМПО визуализация РДС с периодом 300 нм: (а) непосредственно после создания и (б) через 17 часов. «Стирание» РДС: (в) начальное состояние, (г) после сканирования области, обозначенной черной рамкой, с напряжением -50 В и скоростью сканирования 5 мкм/с

## 5.2. Создание регулярных доменных структур в пленках в LNOI с полярной ориентацией, диэлектрическим слоем и электродом

Были изучены возможности создания РДС с субмикронными периодами в пленках с полярной ориентацией в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом.

### 5.2.1 Полосовые домены

Обнаружено, что создание полосовых доменов и РДС при помощи сканирования с приложением постоянного напряжения к зонду СЗМ при комнатной температуре в пленках в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом затруднено самопроизвольным обратным переключением,

вызванным неэффективностью экранирования деполяризующего поля из-за существования изолирующего слоя  $\text{SiO}_2$  между пленкой LN и заземленным нижним электродом. Для повышения скорости экранирования деполяризующего поля было использовано повышение температуры, приводящее к увеличению объемной проводимости пленки [141].

В пленке в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом создавались полосовые домены при температурах от  $25^\circ\text{C}$  до  $100^\circ\text{C}$  с помощью сканирования с приложением постоянного напряжения к зонду СЗМ (Рисунок 5.7а-г). Было выявлено три типа формирующейся доменной структуры в зависимости от температуры, представленные на фазовой диаграмме (Рисунок 5.7ж):

1. Формирование изолированного домена. При  $T < 60^\circ\text{C}$  наблюдалось образование небольших изолированных доменов вблизи точки начала сканирования (Рисунок 5.7а,б).
2. Формирование цепей изолированных доменов. Дальнейший нагрев пленок до  $T > 60^\circ\text{C}$  приводил к образованию неупорядоченных цепей изолированных нанодоменов при напряжении  $V_{\text{tip}} > 150 \text{ В}$  (Рисунок 5.7б,в).
3. Формирование полосового домена. При  $T > 70^\circ\text{C}$  выявлено формирование полосовых доменов при напряжении  $V_{\text{tip}} > 120 \text{ В}$  (Рисунок 5.7в,г).

Ширина создаваемых полосовых доменов была успешно аппроксимирована при помощи уравнения 5.1. Дальнейшее увеличение температуры приводило к нелинейный росту ширины домена (Рисунок 5.7е), что связано с повышением эффективности объемного экранирования.

Изменение температуры и напряжения может быть использовано для контроля скважности при создании РДС с субмикронными периодами.

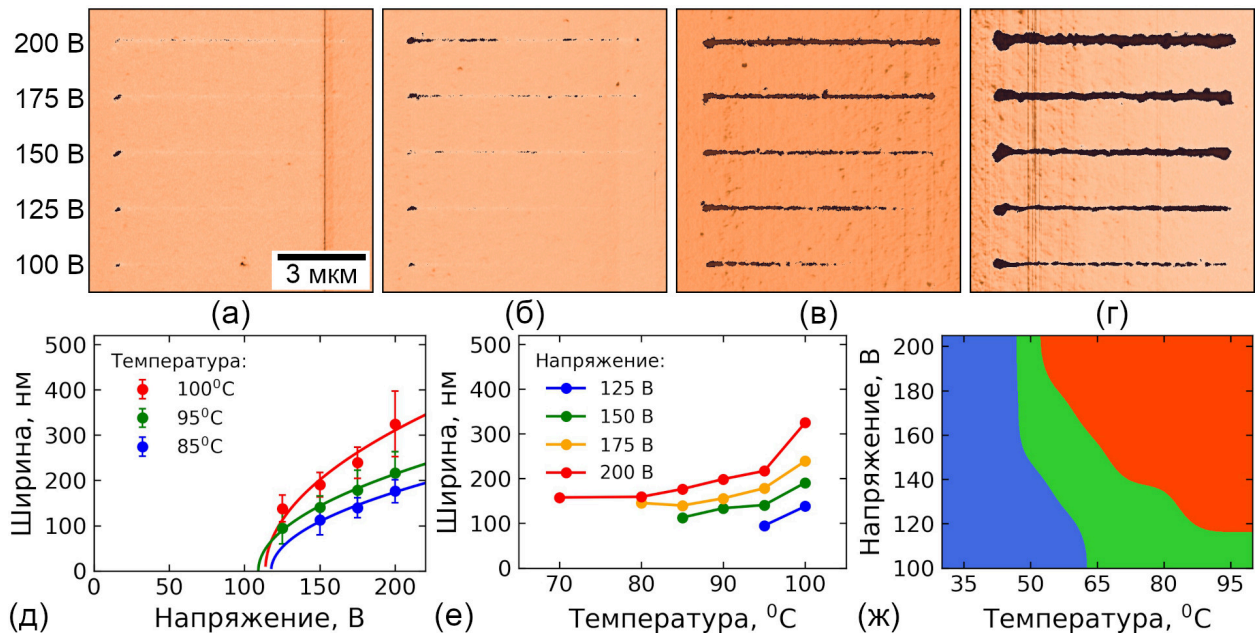


Рисунок 5.7 СМПО визуализация доменов, переключенных при (а) 28<sup>0</sup>С, (б) 60<sup>0</sup>С, (в) 80<sup>0</sup>С, (г) 100<sup>0</sup>С. Зависимости толщины полосовых доменов от (д) напряжения, (е) температуры. (ж) Фазовая диаграмма типов доменов: синий – изолированные, зеленый – цепи нанодоменов, красный – полосовые

### 5.2.2 Регулярные доменные структуры

Были созданы стабильные РДС с периодами от 1 мкм до 200 нм при помощи сканирования с напряжением -125 В и скоростью 1,5 мкм/с при температуре 90<sup>0</sup>С (Рисунок 5.8а-г).

Ширина доменов не изменяется с уменьшением периода вплоть до слияния соседних доменов (Рисунок 5.8д), что свидетельствует о крайне слабом междоменном взаимодействии, обусловленном эффективным экранированием деполяризующего поля при повышенной температуре. Наблюдалась линейная зависимость расстояния между доменами от периода (Рисунок 5.8е). Скважность достигает оптимального значения близкого к 0,5 для созданной РДС с периодом 300 нм (Рисунок 5.8ж). Вариация в ширине полосовых доменов в РДС связывалось с наличием остаточных точечных дефектов, индуцированных при ионной имплантации, а также эффектом с коррелированного зародышеобразования, обнаруженного для изолированных доменов в пленках в LNOI с диэлектрическим слоем и электродом. Дисперсия ширины полосовых доменов не превышала 15% от периода. В созданных РДС

с периодами меньше 300 нм наблюдалось неоднородное слияние полосовых доменов с образованием цепей остаточных нанодоменов (Рисунок 5.8в,г).

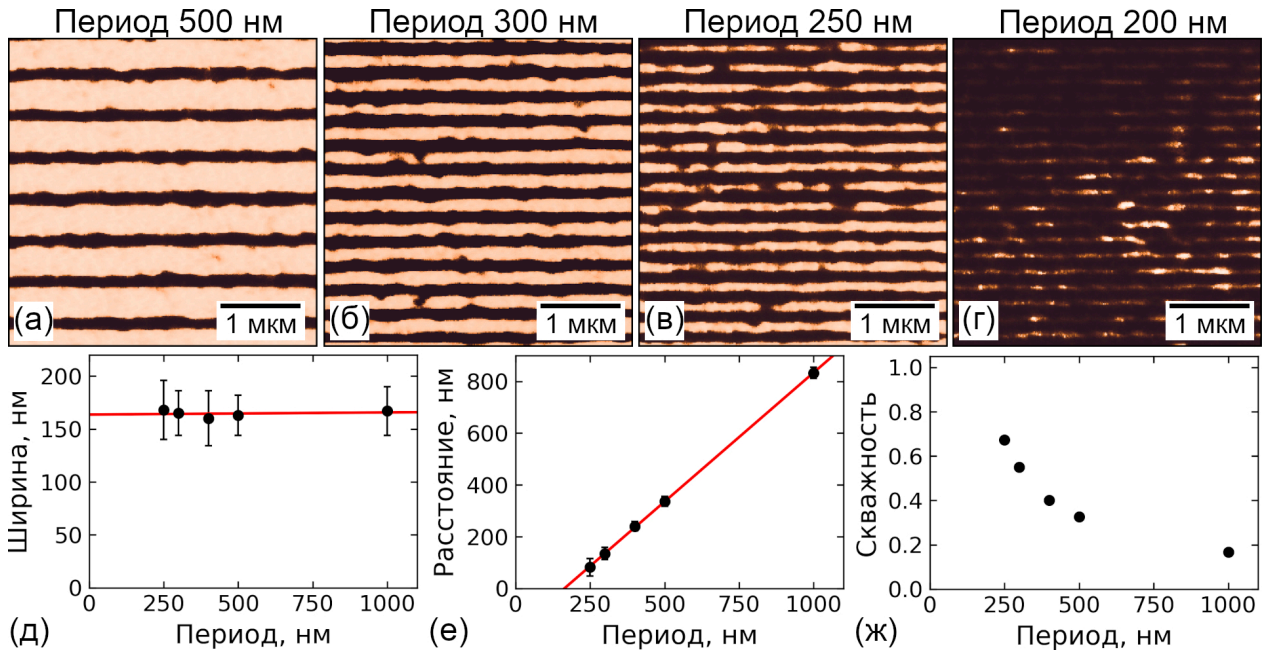


Рисунок 5.8 СМПО визуализация РДС с периодами (а) 500 нм, (б) 300 нм, (в) 250 нм, (г) 200 нм. Зависимости от периода РДС: (д) ширины доменов, (е) расстояние между ними и (ж) сквозности структур

### 5.3. Создание регулярных доменных структур в пленках LNOI с неполярной ориентацией.

Были созданы РДС с периодами от 4 мкм до 300 нм в виде массивов клиновидных доменов с субмикронными периодами в пленках в LNOI с неполярной ориентацией методом локального переключения при помощи импульсов с длительностью 1 с и напряжением -175 В (Рисунок 5.9).

Обнаружено, что при уменьшении периода от 4 мкм до 1 мкм длина клиновидных доменов в массиве остается практически неизменной, что свидетельствует о слабом междоменном взаимодействии (Рисунок 5.9д). Наблюдаемое плавное уменьшение длин доменов в массиве для периодов меньше 1 мкм связывалось с влиянием поверхностного заряда, инжектированного при записи первого домена (Рисунок 5.9в,д). Увеличение ширины основания с увеличением периода было отнесено за счет уменьшения междоменного взаимодействия (Рисунок 5.9е).

Длина клиновидных доменов в РДС линейно зависела от напряжения импульсов (Рисунок 5.9ж). При этом также наблюдалось увеличение разброса длин доменов в массиве при увеличении напряжения, что связывалось с усилением электростатического взаимодействия между ЗДС соседних доменов. Дисперсия разброса длины клиновидных доменов не превышала 15%. Эффекта квазипериодического чередования длин доменов, ранее наблюдавшегося в РДС, также создаваемых локальным переключением поляризации, в пластинах LN с неполярной ориентацией толщиной 500 мкм обнаружено не было [96].

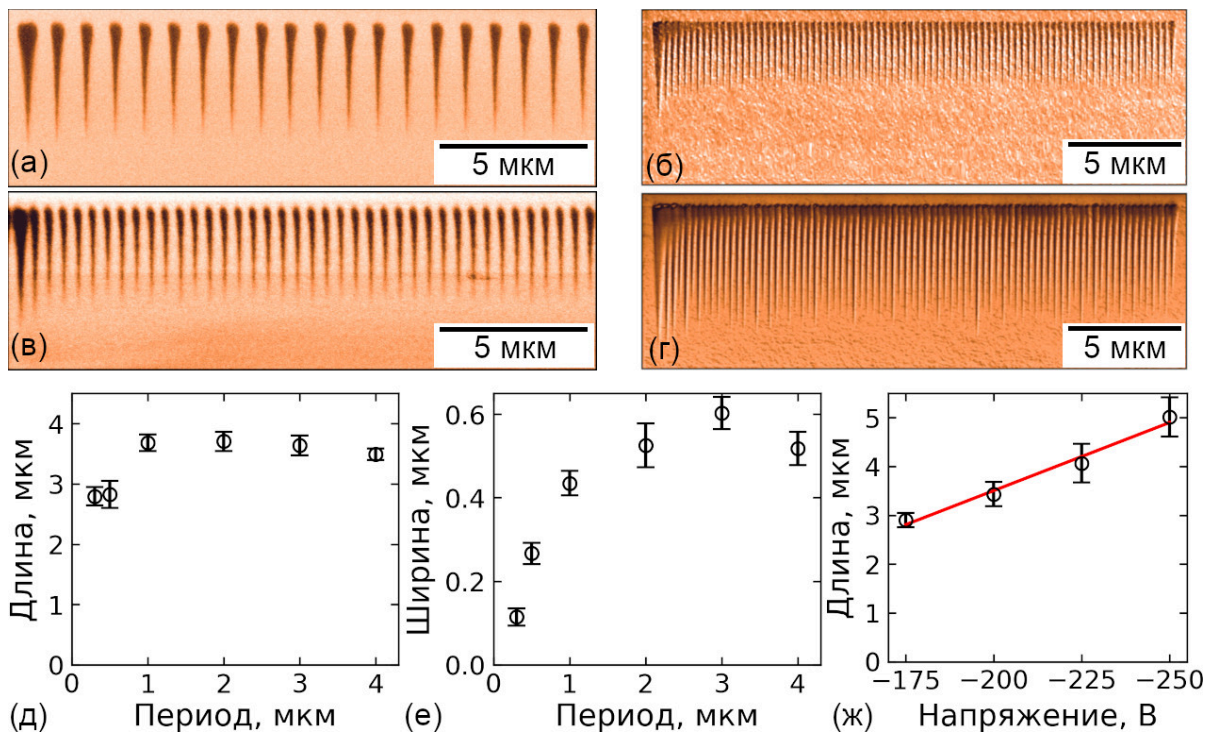


Рисунок 5.9 СМПО визуализация массивов доменов с периодами (а) 3 мкм, (в) 500 нм. Напряжение -175 В, длительность импульсов 1 с. СМПО визуализация массивов доменов с периодом 300 нм, созданных с напряжением (б) -175 В и (г) -250 В и длительностью импульсов 1 с. Зависимости от периода (д) длины и (е) ширины доменов. (ж) Зависимость длины доменов от напряжения.

#### 5.4. Краткие выводы

На основе результатов, полученных при создании РДС в пленках в LNOI с полярной и неполярной ориентациями, можно сделать следующие краткие выводы:

1. Созданы РДС с субмикронными периодами в монокристаллических пленках с полярной ориентацией в LNOI с электродом с помощью сканирования с приложением постоянного напряжения к зонду СЗМ.

2. Выявлены три типа зависимости ширины полосовых доменов от периода РДС в пленках с полярной ориентацией в LNOI с электродом: «уширение доменов», «сужение доменов», «слияние доменов», обусловленные электростатическим взаимодействием между ЗДС.

3. Показано, что создание регулярных доменных структур с субмикронными периодами в пленках в LNOI с полярной ориентацией и диэлектрическим зазором обусловлено эффективным экранированием при повышенной температуре.

4. Созданы РДС с субмикронными периодами в пленках в LNOI с неполярной ориентацией с периодами до 300 нм методом локального переключения.

## Заключение

Проведенное исследование формирования и эволюции доменной структуры при локальном переключении зондом СЗМ в тонких пленках и пластинах ниобата лития с полярной и неполярной ориентацией позволило сделать следующие **основные выводы**:

1. Впервые показано, что рост доменов в тонких пленках ниобата лития с полярной ориентацией, в отличие от пластин LN, обусловлен формированием зубцов на заряженной доменной стенке, а при наличии диэлектрического слоя - образованием изолированных нанодоменов за счет коррелированного зародышеобразования.
2. Выявлено увеличение скорости роста доменов в пленках LN и уменьшение скорости в пластинах LN и в пленках LN с диэлектрическим слоем при увеличении относительной влажности, обусловленное изменением размеров водного мениска в точке контакта зонд-образец.
3. Выявленные различия формы и кинетики роста изолированных клиновидных доменов при локальном переключении в пленках и пластинах LN с неполярной ориентацией обусловлены повышенной объемной проводимостью пленок, вызванной ионной имплантацией.
4. Обнаружено самоорганизованное формирование гребневых доменов с упорядоченным чередованием длины зубцов при сканировании проводящим зондом СЗМ в пленках LN. Выявленное кратное увеличение пространственного периода, отнесено за счет взаимодействия заряженных доменных стенок.
5. Показано, что создание регулярных доменных структур с субмикронными периодами в пленках LN с полярной ориентацией и диэлектрическим зазором обусловлено эффективным экранированием при повышенной температуре, а в пленках с неполярной ориентацией слабым междоменным взаимодействием.
6. Разработаны методы создания регулярных структур полосовых доменов с субмикронными периодами в пленках LN с полярной и неполярной



ориентациями, позволившие получить регулярные доменные структуры с периодом до 200 нм.

### **Перспективы дальнейшей разработки темы**

Результаты, полученные в ходе исследований, будут использованы для продолжения развития методов доменной инженерии при создании регулярных доменных структур в тонких пленках. Будут изучены особенности локального переключения и возможности создания регулярных доменных структур в пленках танталата лития на изоляторе. Будут исследованы возможности масштабирования созданных регулярных доменных структур с субмикронными периодами и их использования для изготовления преобразователей длины волны лазерного излучения в конфигурации обратного рассеяния света. Для создания регулярных доменных структур будут использованы методы облучения сфокусированным излучением фемтосекундного лазера.

## Благодарности

В заключении хочу выразить свою признательность всем тем, кто оказывал мне помощь и поддержку в процессе работы над диссертацией.

В первую очередь хочу поблагодарить своего научного руководителя профессора Шура Владимира Яковлевича за наставничество, активное участие и руководство работой, а также за возможность проводить исследования в современной лаборатории мирового уровня.

Хочу выразить свою признательность Пелегову Дмитрию Вячеславовичу, Аликину Денису Олеговичу и Зеленовскому Павлу Сергеевичу за помощь в освоении методик исследования.

Также благодарю Турыгина Антона Павловича, Абрамова Александра Сергеевича, Гимадееву Любовь Вячеславовну, Ахматханова Андрея Ришатовича, Кособокова Михаила Сергеевича, Грешнякова Евгения Дмитриевича, Кузнецова Дмитрия Константиновича, Пашнину Елену Александровну и весь коллектив сотрудников и студентов лаборатории сегнетоэлектриков за помощь в подготовке образцов, проведении экспериментов и обсуждении результатов.

Крайне признателен Линкеру Эдуарду Алексеевичу за помощь с графическим оформлением работы.

Спасибо преподавателям и сотрудникам Института естественных наук и математики Уральского Федерального Университета за возможность учиться и работать в прекрасном университете.

Большое спасибо моему школьному учителю физики Лиане Георгиевне Гоциридзе, моим родителям и супруге Алле за поддержку, терпение и веру в меня.

С уважением,  
Борис Слаутин

## Список условных обозначений

- $\Delta x_\omega$  – латеральное смещение поверхности,  
 $\Delta z_\omega$  – вертикальное смещение поверхности,  
 $\alpha, \alpha_0$  - тензор поляризуемости,  
 $\theta$  – сдвиг фазы между сигналами,  
 $\xi_i$  – нормальная координата,  
 $\tau_{scr}$  – время объемного экранирования,  
 $\chi$  – диэлектрическая восприимчивость,  
 $\varepsilon$  - диэлектрическая проницаемость,  
 $\varepsilon_a$  – диэлектрическая проницаемость вдоль неполярной оси,  
 $\varepsilon_c$  – диэлектрическая проницаемость вдоль полярной оси,  
 $\omega$  – частота переменного напряжения,  
 $A$  – площадь домена,  
 $A(t)$  – измеряемый пьезоэлектрический отклик,  
 $A_{ES}(t)$  – паразитный электростатический отклик,  
 $A_w$  – амплитуда измеряемого сигнала на частоте возбуждения,  
 $C$  – емкость,  
 $D$  – эффективный диаметр домена,  
 $V_{AC}$  – амплитуда переменного напряжения,  
 $V_{DC}$  – амплитуда постоянного напряжения,  
 $V_{SP}$  – поверхностный потенциал,  
 $V_{tip}$  – напряжение, прикладываемое к зонду СЗМ,  
 $E$  – электрическое поле,  
 $E_{dep}$  – деполяризующее поле,  
 $E_{rd}$  – остаточное деполяризующее поле,  
 $E_{scr}$  – поле внешнего экранирования,  
 $E_{loc}$  – локальное электрическое поле,  
 $E_{th}$  – пороговое поле,  
 $E_{ex}$  – внешнее электрическое поле,

$E_b$  – поле объемного экранирования,  
 $F_{cap}$  – ёмкостная сила взаимодействия между зондом и поверхностью,  
 $F_{ts}$  – сила взаимодействия между зондом и образцом,  
 $k$  – жесткость кантилевера,  
 $k_1, k_2$  – волновые векторы,  
 $L$  – длина кристалла,  
 $LN$  – ниобат лития,  
 $LNOI$  – ниобат лития на изоляторе,  
 $n$  – показатель преломления света,  
 $P$  - поляризация  
 $P_s$  – спонтанная поляризация,  
 $R$  – неэффективность экранирования,  
 $R_M$  – радиус водного мениска,  
 $R_{ip}$  – радиус закругления зонда,  
 $RH$  – относительная влажность,  
 $S$  – скважность,  
 $SAW$  – поверхностная акустическая волна,  
 $SOI$  – кремний на изоляторе,  
 $T_c$  – температура Кюри,  
 $T$  – температура,  
 $t_s$  – время переключения,  
 $MEMS$  – микроэлектромеханические системы,  
 $w$  – ширина домена,  
 $АСМ$  – атомно-силовая микроскопия, атомно-силовой микроскоп,  
 $ГВГ$  – генерация второй гармоники,  
 $ДС$  – доменная стенка,  
 $ЗДС$  – заряженная доменная стенка,  
 $КМКР$  – конфокальная микроскопия комбинационного рассеяния света,  
 $КР$  – комбинационное рассеяние,  
 $ООЭ$  – обратно отраженные электроны,

ПЭМ – просвечивающая электронная микроскопия,

РДС – регулярная доменная структура,

СЗМ – сканирующая зондовая микроскопия, сканирующий зондовый микроскоп,

СМЗК – сканирующая микроскопия зонда Кельвина,

СМПО – силовая микроскопия пьезоэлектрического отклика,

СТМ – сканирующая туннельная микроскопия, сканирующий туннельный микроскоп,

СЭМ – сканирующая электронная микроскопия,

## Список литературы

1. Arizmendi, L. Photonic applications of lithium niobate crystals / L. Arizmendi // *Phys. Status Solidi*. – 2004. – Vol. 201. – № 2. – P. 253–283.
2. Hum, D. S. Quasi-phasematching / D. S. Hum, M. M. Fejer // *C. R. Phys.* – 2007. – Vol. 8. – P. 180–198.
3. Byer, R. L. Quasi-phasematched nonlinear interactions and devices / R. L. Byer // *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.* – 1997. – Vol. 6. – P. 549–592.
4. Shur, V. Y. Micro- and nano-domain engineering in lithium niobate / V. Y. Shur, A. R. Akhmatkhanov, I. S. Baturin // *Appl. Phys. Rev.* – 2015. – Vol. 2. – P. 040604.
5. Harris, S. E. Proposed backward wave oscillation in the infrared / S. E. Harris // *Appl. Phys. Lett.* – 1966. – Vol. 9. – P. 114–116.
6. Rabiei, P. Optical and electro-optical properties of submicrometer lithium niobate slab waveguides prepared by crystal ion slicing and wafer bonding / P. Rabiei, P. Gunter // *Appl. Phys. Lett.* – 2004. – Vol. 85. – P. 4603–4605.
7. Saravi, S. Lithium niobate on insulator: an emerging platform for integrated quantum photonics / S. Saravi, T. Pertsch, F. Setzpfandt // *Adv. Opt. Mater.* – 2021. – Vol. 9. – P. 2100789.
8. Jia, Y. Ion-cut lithium niobate on insulator technology: recent advances and perspectives / Y. Jia, L. Wang, F. Chen // *Appl. Phys. Rev.* – 2021. – Vol. 8. – P. 011307.
9. Shaw, T. M. The properties of ferroelectric films at small dimensions / T. M. Shaw, S. Trolier-McKinstry, P. C. McIntyre // *Annu. Rev. Mater. Sci.* – 2000. – Vol. 30. – P. 263–298.
10. Gregg, J. M. Ferroelectrics at the nanoscale / J. M. Gregg // *Phys. Status Solidi A-Appl. Mat.* – 2009. – Vol. 206. – P. 577–587.
11. Poling thin-film x-cut lithium niobate for quasi-phase matching with submicrometer periodicity / J. Zhao et al. // *J. Appl. Phys.* – 2020. – Vol. 127. – P. 193104.

12. Actively-monitored periodic-poling in thin-film lithium niobate photonic waveguides with ultrahigh nonlinear conversion efficiency of 4600 %W<sup>-1</sup>cm<sup>-2</sup> / A. Rao et al. // *Opt. Express.* – 2019. – Vol. 27. – P. 25920–25930.
13. Gainutdinov R. V. Domain formation and polarization reversal under atomic force microscopy-tip voltages in ion-sliced LiNbO<sub>3</sub> films on SiO<sub>2</sub>/LiNbO<sub>3</sub> substrates / R. V. Gainutdinov, T. R. Volk, H. H. Zhang // *Appl. Phys. Lett.* – 2015. – Vol. 107. – P. 162903.
14. Lambeckm, P. V. The nature of domain stabilization in ferroelectric perovskites / P. V. Lambeck, G. H. Jonker // *J. Phys. Chem. Solids.* – 1986. – Vol. 47. – № 5. – P. 453–461.
15. Fatuzzo, E. Surface layer in BaTiO<sub>3</sub> single crystals / E. Fatuzzo, W. J. Merz // *J. Appl. Phys.* – 1961. – Vol. 32. – № 9. – P. 1685–1687.
16. Polarization fatigue in ferroelectric films: Basic experimental findings, phenomenological scenarios, and microscopic features / A. K. Tagantsev et al. // *J. Appl. Phys.* – 2001. – Vol. 90. – № 3. – P. 1387–1402.
17. Ferroelectric thin films: Review of materials, properties, and applications / N. Setter et al. // *J. Appl. Phys.* – 2006. – Vol. 100. – № 5. – P. 051606.
18. Tadigadapa, S. Piezoelectric MEMS sensors: State-of-the-art and perspectives / S. Tadigadapa, K. Mateti // *Meas. Sci. Technol.* – 2009. – Vol. 20. – № 9. – P. 092001.
19. Watton, R. Ferroelectric materials and devices in infrared detection and imaging / R. Watton // *Ferroelectrics.* – 1989. – Vol. 91. – № 1. – P. 87–108.
20. Pyroelectric energy conversion and its applications—flexible energy harvesters and sensors / A. Thakre et al. // *Sensors.* – 2019. – Vol. 19. – № 9. – P. 2170.
21. Kim, T. Y. Application of ferroelectric materials for improving output power of energy harvesters / T. Y. Kim, S. K. Kim, S.-W. Kim // *Nano Convergence.* – 2018. – Vol. 5. – P. 30.
22. Scott, J. F. *Ferroelectric Memories.* – Heidelberg: Springer Berlin, 2000. – 248 p.

23. Fatigue, rejuvenation and self-restoring in ferroelectric thin films / Cz. Pawlaczyk et al. // *Integr. Ferroelectr.* – 1995. – Vol. 9. – № 4. – P. 293–316.
24. Dimos, D. Ferroelectric thin films for photonics: Properties and applications / D. Dimos // *Annu. Rev. Mater. Sci.* – 1995. – Vol. 25. – P. 273–293.
25. Optical properties of KTP crystals and their potential for terahertz generation / A. Mamrashev et al. // *Crystals.* – 2018. – Vol. 8. – № 8. – P. 310.
26. Shur, V. Y. Nano- and micro-domain engineering in normal and relaxor ferroelectrics / V. Y. Shur // *Handbook of Advanced Dielectric, Piezoelectric and Ferroelectric Materials* / ed. by Z.-G. Ye. – Sawston, 2008. – P. 622–669.
27. Forward growth of ferroelectric domains with charged domain walls. Local switching on non-polar cuts / V. Y. Shur et al. // *J. Appl. Phys.* – 2021. – Vol. 129. – P. 044103.
28. Investigation of jerky domain wall motion in lithium niobate / I. S. Baturin et al. // *Ferroelectrics.* – 2008. – Vol. 374. – № 1. – P. 136–143.
29. Abnormal domain growth in lithium niobate with surface layer modified by proton exchange / M. A. Dolbilov et al. // *Ferroelectrics.* – 2010. – Vol. 398. – № 1. – P. 108–114.
30. Nanoscale backswitched domain patterning in lithium niobate / V. Ya. Shur et al // *Appl. Phys. Lett.* – 2000. – Vol. 76. – № 2. – P. 143-145.
31. Nanodomain structures formation during polarization reversal in uniform electric field in strontium barium niobate single crystals / V. Y. Shur et al. // *J. Appl. Phys.* – 2012. – Vol. 112. – P. 064117.
32. Shur, V. Y. Correlated Nucleation and Self-Organized Kinetics of Ferroelectric Domains / V. Y. Shur // *Nucleation Theory and Applications.* – Weinheim, 2005. 178–214 p.
33. Domain structure of lead germanate / V. Y. Shur et al. // *Ferroelectrics.* – 1989. – Vol. 98. – № 1. – P. 29–49.
34. Discrete switching by growth of nano-scale domain rays under highly-nonequilibrium conditions in lithium niobate single crystals / A. I. Lobov et al. // *Ferroelectrics.* – 2008. – Vol. 373. – № 1 – P. 99–108.



35. Beating the superparamagnetic limit with exchange bias / V. Skumryev et al. // *Nature*. – 2003. – Vol. 423. – P. 850–853.
36. Физика сегнетоэлектриков: современный взгляд: учебное пособие / под редакцией К. М. Рабе [и др.]; перевод с английского Б. А. Струкова, А. И. Лебедева. — 4-е изд. — М.: Лаборатория знаний, 2020. — 443 с.
37. Sepliarsky, M. Interface effects in ferroelectric PbTiO<sub>3</sub> ultrathin films on a paraelectric substrate / M. Sepliarsky, M. G. Stachiotti, R. L. Migoni // *Phys. Rev. Lett.* – 2006. – Vol. 96. – № 13. – P. 137603.
38. Atomic-scale compensation phenomena at polar interfaces / M. F. Chisholm et al. // *Phys. Rev. Lett.* – 2010. – Vol. 105. – P. 197605.
39. Ionic polarizability of conductive metal oxides and critical thickness for ferroelectricity in BaTiO<sub>3</sub> / G. Gerra et al. // *Phys. Rev. Lett.* – 2006. – Vol. 96. – № 10. – P. 169904.
40. Possible absence of critical thickness and size effect in ultrathin perovskite ferroelectric films / P. Gao et al. // *Nat. Commun.* – 2017. – Vol. 8. – P. 15549.
41. Ghosez, P. Microscopic model of ferroelectricity in stress-free PbTiO<sub>3</sub> ultrathin films / P. Ghosez, K. M. Rabe // *Appl. Phys. Lett.* – 2000. – Vol. 76 – № 19. – P. 2767–2769.
42. Meyer, B. Ab initio study of BaTiO<sub>3</sub> and PbTiO<sub>3</sub> surfaces in external electric fields / B. Meyer, D. Vanderbilt // *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* – 2001. – Vol. 63. – № 20. – P. 1–11.
43. Mehta, R. R. Depolarization fields in thin ferroelectric films / R. R. Mehta, B. D. Silverman, J. T. Jacobs // *J. Appl. Phys.* – 1973. – Vol. 44. – № 8. – P. 3379–3385.
44. Kinoshita, K. Grain-size effects on dielectric properties in barium titanate ceramics / K. Kinoshita, A. Yamaji // *J. Appl. Phys.* – 1976. – Vol. 47. – № 1. – P. 371–373.
45. Intrinsic and extrinsic size effects in fine-grained morphotropic-phase-boundary lead zirconate titanate ceramics / C. Randall et al. // *J. Am. Ceram. Soc.* – 1998. – Vol. 81. – № 3. – P. 677–688.

46. Pertsev, N. A. Effect of mechanical boundary conditions on phase diagrams of epitaxial ferroelectric thin films / N. A. Pertsev, A. G. Zembilgotov, A. K. Tagantsev // *Phys. Rev. Lett.* – 1998. – Vol. 80. – № 9. – P. 1988–1991.
47. Fridkin, V. The ferroelectricity at the nanoscale / V. Fridkin, S. Ducharme // *Ferroelectrics.* – 2014. – Vol. 466. – № 1. – P. 133–144.
48. Coercive fields in ultrathin BaTiO<sub>3</sub> capacitors / J. Y. Jo et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2006. – Vol. 89. – P. 232909.
49. Depolarization corrections to the coercive field in thin-film ferroelectrics / M. Dawber et al. // *J. Phys.: Condens. Matter.* – 2003. – Vol. 15. – № 24. – P. L393–L398.
50. Forsbergh, P. W. Effect of a two-dimensional pressure on the curie point of barium titanate / P. W. Forsbergh // *Phys. Rev.* – 1954. – Vol. 93. – № 4. – P. 686–692.
51. Scaling effects in perovskite ferroelectrics: fundamental limits and process-structure-property relations / J. F. Ihlefeld et al. // *J. Am. Ceram. Soc.* – 2016. – Vol. 99. – № 8. – P. 2537–2557.
52. Houé, M. An introduction to methods of periodic poling for second-harmonic generation / M. Houé, P. D. Townsend // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – 1995. – Vol. 28. – № 9. – P. 1747–1763.
53. Weis R. Lithium niobate: summary of physical properties and crystal structure / R. Weis, T. Gaylord // *Appl. Phys. A.* – 1985. – Vol. 37. – № 4. – P. 191–203.
54. Volk, T. Lithium niobate: Defects, photorefraction and ferroelectric switching / T. Volk, M. Wöhlecke. – Berlin : Springer, 2009. – 249 p.
55. Volk, M. Optical ridge waveguides in lithium niobate and potassium titanyl phosphate : PhD thesis / Martin Volk ; Helmut Schmidt University. – Hamburg, 2018. – 126 p.
56. Prokhorov, A. M. Physics and chemistry of crystalline lithium niobate / A. M. Prokhorov, Y. S Kuz'minov. – London : Taylor & Francis, 1990. – 260 p.

57. Sturman, B. I. The Photovoltaic and Photorefractive Effects in Noncentrosymmetric Materials / B. I. Sturman, V. M. Fridkin – Portland : CRC Press, 1992 – 264 p.
58. Acoustic wave filter based on periodically poled lithium niobate / E. Courjon et al. // IEEE Trans. Sonics Ultrason. – 2012. – Vol. 59. – № 9. – P. 1942–1949.
59. Electro-optically tunable microring resonators in lithium niobate / A. Guarino et al. // Nat. Photonics. – 2007. – Vol. 1 – P. 407–410.
60. Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO<sub>3</sub> / L. E. Myers et al. // J. Opt. Soc. Am. – 1995. – Vol. 12. – № 11. – P. 2102–2116.
61. Myers, L.E. Periodically poled lithium niobate and quasi-phase-matched optical parametric oscillators / L. E. Myers, W. R. Bosenberg // IEEE J. Quantum Electron. – 1997. – Vol. 33. – № 10. – P. 1663–1672.
62. Kores, C. C. Quasi-phase matching waveguides on lithium niobate and KTP for nonlinear frequency conversion: a comparison / C. C. Kores, C. Canalias, F. Laurell // APL Photonics. – 2021. – Vol. 6. – № 9. – P. 091102.
63. Bruel, M. Silicon on insulator material technology / M. Bruel // Electron. Lett. – 1995. – Vol. 31. – № 14. – P. 1201–1202.
64. Lithium niobate on insulator (LNOI) for micro-photonics devices / G. Poberaj et al. // Laser Photonics Rev. – 2012. – Vol. 6. – № 4. – P. 488–503.
65. Сайт компании Jinan Jingzheng Electronics Co., Ltd. [Электронный ресурс]. – Jinan: Jinan Jingzheng Electronics Co., 2014. - . – Режим доступа : <https://www.nanoln.com>, свободный. – Загл. с экрана.
66. Nanophotonic lithium niobate electro-optic modulators / C. Wang et al. // Opt. Express. – 2018. – Vol. 26. – № 2. – P. 1547–1555.
67. Lithium niobate-on-insulator (LNOI): status and perspectives / H. Hu et al. // Proc. SPIE 8431., Silicon Photonics and Photonic Integrated Circuits III. – 2012. – P. 84311D.

68. Status and potential of lithium niobate on insulator (LNOI) for photonic integrated circuits / Boes A. et al. // *Laser Photonics Rev.* – 2018. – Vol. 12. – № 4. – P. 1700256.
69. Low loss ridge waveguides in lithium niobate thin films by optical grade diamond blade dicing / M. F. Volk et al. // *Opt. Express.* – 2016. – Vol. 24. – № 2. – P. 1386–1391.
70. High aspect ratio lithium niobate ridge waveguides fabricated by optical grade dicing / N. Courjal et al. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – 2011. – Vol. 44. – № 30. – P. 305101.
71. Towards nonlinear photonic wires in lithium niobate / H. Hu et al. // *Integrated Optics: Devices, Materials, and Technologies XIV.* – 2010. – P. 76040R.
72. Thin-film lithium niobate electro-optic modulator on a D-shaped fiber / M. Wang et al. // *Opt. Express.* – 2020. – Vol. 28. – № 15. – P. 21464–21473.
73. Yu, Z. Acousto-optic modulation of photonic bound state in the continuum / Z. Yu, X. Sun // *Light: Sci. Appl.* – 2020. – Vol. 9. – P. 1–9.
74. Effective four-wave mixing in the lithium niobate on insulator microdisk by cascading quadratic processes / S. Liu et al. // *Opt. Lett.* – 2019. – Vol. 44. – № 6. – P. 1456–1459.
75. Microdisk resonators with lithium-niobate film on silicon substrate / L. Zhang et al. // *Opt. Express.* – 2019. – Vol. 27. – № 23. – P. 33662–33669.
76. Zhou, Z. Electro-optically tunable racetrack dual microring resonator with a high quality factor based on a lithium niobate-on-insulator / Z. Zhou, S. Zhang // *Opt. Commun.* – 2020. – Vol. 458. – P. 124718.
77. Optical parametric generation in a lithium niobate microring with modal phase matching / R. Luo et al. // *Phys. Rev. Appl.* – 2019. – Vol. 11. – № 3. – P. 034026.
78. Krasnokutskaya, I Submicron domain engineering in periodically poled lithium niobate on insulator / I. Krasnokutskaya, J. L. J. Tambasco, A. Peruzzo // *arXiv preprint arXiv:2108.10839.* – 2021.

79. Ultrahigh-efficiency wavelength conversion in nanophotonic periodically poled lithium niobate waveguides / C. Wang et al. // *Optica*. – 2018. – Vol. 5. – № 11. – P. 1438–1441.
80. Broadband sum-frequency generation using  $d_{33}$  in periodically poled LiNbO<sub>3</sub> thin film in the telecommunications band / G. Li et al. // *Opt. Lett.* – 2017. – Vol. 42. – № 5. – P. 939–942.
81. Locally periodically poled LNOI ridge waveguide for second harmonic generation. / B. Mu et al. // *Chin. Opti. Letters*. – 2021. – Vol. 19. – № 6. – P. 060007.
82. Frommer, J. Scanning Tunneling Microscopy and Atomic Force Microscopy in Organic Chemistry / J. Frommer // *Angew. Chem., Int. Ed. Engl.* – 1992. – Vol. 31. – № 10. – P. 1298–1328.
83. Binnig, G. Atomic Force Microscope / G. Binnig, C. F. Quate, Ch. Gerber // *Phys. Rev. Lett.* – 1986. – Vol. 56. – № 9. – P. 930–933.
84. Güthner, P. Local poling of ferroelectric polymers by scanning force microscopy / P. Güthner, K. Dransfeld // *Appl. Phys. Lett.* – 1992. – Vol. 61. – № 9. – P. 1137–1139.
85. Review of Ferroelectric Domain Imaging by Piezoresponse Force Microscopy / A. L. Kholkin et al. // *Scanning Probe Microscopy* / ed. by S. Kalinin, A. Gruverman. – New York : Springer New York, 2007. – P. 173–214.
86. Soergel, E. Piezoresponse force microscopy (PFM) / E. Soergel // *J. Phys. D. Appl. Phys.* – 2011. Vol. 44. – № 46. – P. 464003.
87. Seol, D. Non-piezoelectric effects in piezoresponse force microscopy / D. Seol, B. Kim, Y. Kim // *Current Applied Physics*. – 2017. – Vol. 17. – P. 661–674.
88. Domain growth kinetics in lithium niobate single crystals studied by piezoresponse force microscopy / B. J. Rodriguez et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2005. – Vol. 86. – P. 012906.
89. Mele, E. J. Screening of a point charge by an anisotropic medium: Anamorphoses in the method of images / E. J. Mele. // *Am. J. Phys.* 2001. Vol. 69, № 5. P. 557–562.

90. Starkov, A. Theoretical model of SPM-tip electrostatic field accounting for dead layer and domain wall / A. Starkov, I. Starkov // Proc. 2012 21<sup>st</sup> IEEE Int. Symp. Appl. Ferroelectr. – 2012. – P. 1-4.
91. van der Zwan, G. Dielectric friction and ionic hydration near boundaries: Image charge effects/ G. van der Zwan, R. M. Mazo // J. Chem. Phys. – 1985. – Vol. 82. – № 7. – P. 3344.
92. Microscale to nanoscale ferroelectric domain and surface engineering of a near-stoichiometric LiNbO<sub>3</sub> crystal / K. Terabe et al. // Appl. Phys. Lett. – 2003. – Vol. 82. – № 3. – P. 433–435.
93. Tip-induced domain growth on the non-polar cuts of lithium niobate single-crystals / D. O. Alikin et al. // Appl. Phys. Lett. – 2015. – Vol. 106. – № 18. – P. 182902.
94. Symmetry breaking and electrical frustration during tip-induced polarization switching in the nonpolar cut of lithium niobate single crystals / A. V. Ievlev et al. // ACS Nano. 2015. – Vol. 9. – № 1. –P. 769–777.
95. Intermittency, quasiperiodicity and chaos in probe-induced ferroelectric domain switching / Ievlev A. V. et al. // Nat. Phys. – 2014. – Vol. 10. – № 1. – P. 59–66.
96. The formation of self-organized domain structures at non-polar cuts of lithium niobate as a result of local switching by an SPM tip / A.P. Turygin et al. // Materials. – 2017. – Vol. 10. – № 10. – P. 1143.
97. Self-organized domain formation by moving the biased SPM tip / A. P. Turygin et al. // Ferroelectrics. – 2019. – Vol. 542. – P. 70–76.
98. B. L. Weeks Direct imaging of meniscus formation in atomic force microscopy using environmental scanning electron microscopy / B. L. Weeks, M. W. Vaughn, J. J. Deyoreo // Langmuir. – 2005. – Vol. 21. – № 18. – P. 8096–8098.
99. Asay D. B. Effects of adsorbed water layer structure on adhesion force of silicon oxide nanoasperity contact in humid ambient / D. B. Asay., S. H. Kim // J. Chem. Phys. – 2006. – Vol. 124. – № 17. – P. 174712.

100. Nanoscale electrochemical phenomena of polarization switching in ferroelectrics / A. V. Ievlev et al. // *ACS Appl. Mater. Interfaces*. – 2018. – Vol. 10. – № 44. – P. 38217–38222.
101. The role of electrochemical phenomena in scanning probe microscopy of ferroelectric thin films / S. V. Kalinin et al. // *ACS Nano*. – 2011. – Vol. 5. – № 7. – P. 5683–5691.
102. Ferroelectric domain inversion: the role of humidity / D. Dahan et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2006. – Vol. 89. – P. 152902.
103. Blaser, C. Subcritical switching dynamics and humidity effects in nanoscale studies of domain growth in ferroelectric thin films / C. Blaser, P. Paruch // *New J. Phys.* – 2015. – Vol. 17. – P. 013002.
104. Humidity effects on tip-induced polarization switching in lithium niobate / A. V. Ievlev et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2014. – Vol. 104. – № 9. – P. 092908.
105. Influence of humidity on local polarization reversal in a Rb:KTP single crystal / E. V. Shishkina et al. // *ACS Appl. Electron. Mater.* – 2021. – Vol. 3. – № 1. – P. 260–266.
106. Brugère, A. Finite element method simulation of the domain growth kinetics in single-crystal LiTaO<sub>3</sub>: role of surface conductivity / A. Brugère, S. Gidon, B. Gautier // *J. Appl. Phys.* – 2011. – Vol. 110. – № 5. – P. 052016.
107. Tilt control of the charged domain walls created by local switching on the non-polar cut of MgO doped lithium niobate single crystals / Y. M. Alikin et al. // *Ferroelectrics*. – 2021. – Vol. 574. – P. 16–22.
108. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric / J. A. Armstrong et al. // *Phys. Rev.* – 1962. – Vol. 127. – № 6. – P. 1918–1939.
109. Giordmaine, J. A. Tunable coherent parametric oscillation in LiNbO<sub>3</sub> at optical frequencies / J. A. Giordmaine, R. C. Miller // *Phys. Rev. Lett.* – 1965. – Vol. 14. – № 14. – P. 973–976.
110. Highly efficient photon-pair source using periodically poled lithium niobate waveguide / S. Tanzilli et al. // *Electron. Lett.* – 2001. – Vol. 37. – № 1. – P. 26–28.

111. Byer, R. L. Optical parametric oscillation and amplification introduction / R. L. Byer, A. Piskarskas // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 1993. – Vol. 10. – № 11. – P. 2148–2150.
112. Nonlinear phase shift at 1.55  $\mu\text{m}$  in CW single-pass cascaded parametric interactions in PPLN waveguides / P. Baldi et al. // *Electron. Lett.* – 1999. – Vol. 35. – № 3. – P. 217–219.
113. Ming, N.-B. The growth striations and ferroelectric domain structures in Czochralski-grown  $\text{LiNbO}_3$  single crystals / N.-B. Ming, J.-F. Hong, D. Feng // *J. Mater. Sci.* – 1982. – Vol. 17. – № 6. – P. 1663-1670.
114. Enhancement of second-harmonic generation in  $\text{LiNbO}_3$  crystals with periodic laminar ferroelectric domains / D. Feng et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 1980. – Vol. 37. – № 7. – P. 607–609.
115. Periodically poled  $\text{LiNbO}_3$  for high-efficiency second-harmonic generation / Jundt D.H. et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 1991. – Vol. 59. – № 21. – P. 2657–2659.
116. Feisst, A. Current induced periodic ferroelectric domain structures in  $\text{LiNbO}_3$  applied for efficient nonlinear optical frequency mixing / A. Feisst, P. Koidl // *Appl. Phys. Lett.* – 1985. – Vol. 47. – № 11. – P. 1125–1127.
117. Fabrication of periodically inverted domain structures in  $\text{LiTaO}_3$  and  $\text{LiNbO}_3$  using proton exchange / S. Makio et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 1992. – Vol. 61. – № 26. – P. 3077–3079.
118. First-order quasi-phase matched  $\text{LiNbO}_3$  waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation / M. Yamada et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 1993. – Vol. 62. – № 5. – P. 435–436.
119. Periodically poled  $\text{LiNbO}_3$  crystals from 1D and 2D to 3D / T. X. Wang et al. // *Sci. China: Technol. Sci.* – 2020. – Vol. 63. – P. 1110–1126.
120. Ishizuki, H. Periodical poling characteristics of congruent  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  crystals at elevated temperature / H. Ishizuki, I. Shoji, T. Taira // *Appl. Phys. Lett.* – 2003. – Vol. 82. – № 23. – P. 4062–4064.



121. Goldberg, L. Blue light generation in bulk periodically field poled LiNbO<sub>3</sub> / L. Goldberg, R. W. McElhanon, W. K. Burns // *Electron. Lett.* – 1995. – Vol. 31. – № 18. – P. 1576–1577.
122. Sonoda, S. Second harmonic generation in electric poled X-cut MgO-doped LiNbO<sub>3</sub> waveguides / S. Sonoda, I. Tsuruma, M. Hatori // *Appl. Phys. Lett.* – 1997. – Vol. 70. – № 23. – P. 3078–3080.
123. Electron-beam-induced domain poling in LiNbO<sub>3</sub> for two-dimensional nonlinear frequency conversion / Y. Glickman et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2006. – Vol. 88. – № 1. – P. 011103.
124. Electron-beam poling on Ti:LiNbO<sub>3</sub> / C. Restoin et al. // *Appl. Opt.* – 2001. – Vol. 40. – № 33. – P. 6056–6061.
125. Noncollinear second-harmonic generation in sub-micrometer-poled RbTiOPO<sub>4</sub> / S. Moscovich et al. // *Opt. Express.* – 2004. – Vol. 12. - № 10. – P. 2236–2242.
126. Calligraphic poling of lithium niobate / M. Mohageg et al. // *Opt. Express.* – 2005. – Vol. 13. – № 9. – P. 3408–3419.
127. Canalías, C. Mirrorless optical parametric oscillator / C. Canalías, V. Pasiskevicius // *Nat. Photonics.* – 2007. – Vol. 1. – P. 459–462.
128. Qi, Y. Integrated lithium niobate photonics / Y. Qi, Y. Li // *Nanophotonics.* – 2020. – Vol. 9. – № 6. – P. 1287–1320.
129. Periodic domain inversion in x-cut single-crystal lithium niobate thin film / P. Mackwitz et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2016. – Vol. 108. – № 15. – P. 152902.
130. Periodically poled thin-film lithium niobate microring resonators with a second-harmonic generation efficiency of 250,000%/W / J. Lu et al. // *Optica.* – 2019. – Vol. 6. – № 12. – P. 1455–1460.
131. Optimizing the efficiency of a periodically poled LNOI waveguide using in situ monitoring of the ferroelectric domains / Y. Niu et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2020. – Vol. 116. – № 10. – P. 101104.

132. Volk, T. Domain patterning in ion-sliced LiNbO<sub>3</sub> films by atomic force microscopy / T. Volk, R. Gainutdinov, H. Zhang // *Crystals*. – 2017. – Vol. 7. – № 5. – P. 137.
133. Improvement on thermal stability of nano-domains in lithium niobate thin films / Y. Jiao et al. // *Crystals*. – 2020. – Vol. 10. – № 2. – P. 74.
134. Characterizing Crystalline Materials in the SEM / Goldstein J.I. et al. // *Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis*. – New York : Springer New York, 2018. - P. 491–515.
135. Zaefferer, S. Theory and application of electron channelling contrast imaging under controlled diffraction conditions / S. Zaefferer, N.-N. Elhami // *Acta Mater.* – 2014. – Vol. 75. – P. 20–50.
136. Picard, Y. N. Diffraction contrast and Bragg reflection determination in foreshattered electron channeling contrast images of threading screw dislocations in 4H-SiC / Y. N. Picard, M. E. Twigg // *J. Appl. Phys.* – 2008. – Vol. 104. – № 12. – P. 124906.
137. Formation and evolution of charged domain walls in congruent lithium niobate / V. Y. Shur et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2000. – Vol. 77. – P. 3636–3638.
138. Electrical tunability of domain wall conductivity in LiNbO<sub>3</sub> thin films / H. Lu et al. // *Adv. Mater.* – 2019. – Vol. 31. – № 48. – P. 1902890.
139. Influence of adsorbed surface layer on domain growth in the field produced by conductive tip of scanning probe microscope in lithium niobate / V. Ya. Shur et al. // *J. Appl. Phys.* 2011. – Vol. 110. – № 5. – P. 052017.
140. Static conductivity of charged domain walls in uniaxial ferroelectric semiconductors / E. A. Eliseev et al. // *Phys. Rev. B*. – 2011. – Vol. 83. – № 23. – P. 235313.
141. Esin, A. A. The electronic conductivity in single crystals of lithium niobate and lithium tantalate family / A. A. Esin, A. R. Akhmatkhanov, V. Y. Shur // *Ferroelectrics*. – 2016. – Vol. 496. – P. 102–109.
142. Ferroelectric Domain Wall Memristor / J. P. V. McConville et al. // *Adv. Funct. Mater.* – 2020. – Vol. 30. – P. 2000109.

143. Minor, C.E. Mirrorless optical parametric oscillation in bulk PPLN and PPLT: a feasibility study / C. E. Minor, R. S. Cudney // *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* – 2017. – Vol. 123. – P. 38.
144. Domain patterning by electron beam of MgO doped lithium niobate covered by resist / V. Y. Shur et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2015. – Vol. 106. – P. 232902.
145. Shur, V. Y. Kinetics of ferroelectric domain structure: retardation effects / V. Y. Shur, E. L. Rummyantsev // *Ferroelectrics.* – 1997. – Vol. 191. – P. 319–333.
146. Shur, V. Ya. Kinetics of ferroelectric domains: Application of general approach to  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$  // *J. Mater. Sci.* – 2006. – Vol. 1. – P. 199–210.

### Список публикаций по теме диссертации

- A1 Domain structure formation by local switching in the ion sliced lithium niobate thin films / **B. N. Slautin** et al. // Appl. Phys. Lett. – 2020. – Vol. 116. – № 15. – P. 152904 – 0,5 п.л. / 0,1 п.л.
- A2 **Slautin, B. N** Submicron periodical poling in Z-cut lithium niobate thin films / **B. N. Slautin**, H. Zhu, V. Ya. Shur // Ferroelectrics. – 2021– Vol. 576. –№ 1. – P. 119–128 – 0,5 п.л. / 0,2 п.л.
- A3 **Slautin, B. N.** Submicron periodical poling by local switching in ion sliced lithium niobate thin films with a dielectric layer / **B. N. Slautin**, H. Zhu, V. Ya. Shur // Ceram. Int.– 2021. – Vol. 47. – P. 32900-32904 – 0,5 п.л. / 0,2 п.л.

### Тезисы международных и всероссийских конференций:

1. Discrete switching during local polarization reversal in ion sliced lithium niobate thin films / B. N. Slautin et al. // Book of abstracts of Joint International Conference SPM-2019-RCWDFM, Ekaterinburg, Russia, August 25-28, 2019, – P. 267. – 0,1 п.л. / 0,02 п.л.
2. Слаутин, Б. Н. Периодические доменные структуры с субмикронным периодом в тонких пленках ниобата лития / Б. Н. Слаутин, H. Zhu, В. Я. Шур // Сборник тезисов Международной онлайн-конференции «Исследование сегнетоэлектрических материалов российскими учеными. Столетие открытия сегнетоэлектричества» (СЭ-100), Екатеринбург, 17-19 августа 2020, – С. 163–164. – 0,1 п.л. / 0,02 п.л.
3. Слаутин, Б. Н. Нанодоменные структуры в тонких пленках ниобата лития / Б. Н. Слаутин, H. Zhu, В. Я. Шур // Труды XXV Международного симпозиума Нанопизика и нанoeлектроника, Нижний Новгород, Россия, 9–12 марта 2021, – Т. 1. – С. 331–332. – 0,1 п.л. / 0,02 п.л.
4. Shur, V. Periodical Poling with Submicron Periods in LNOI Wafers / V. Shur, B. Slautin, H. Zhu // Abstract book of AMF-AMEC-2021, Bangkok, Thailand, July 7-9, 2021, – P. 9. – 0,1 п.л. / 0,02 п.л.

5. Слаутин, Б. Н. Создание регулярных доменных структур с субмикронными периодами в тонких пленках ниобата лития на изоляторе / Б. Н. Слаутин, Н. Zhu, В. Я. Шур // Сборник тезисов XXII Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков (ВКС-XXII), Екатеринбург, Россия, 25-28 августа 2021, – С. 232. – 0,1 п.л. / 0,02 п.л.
6. Shur, V. Ya. Periodical poling with submicron periods in Z-cut lithium niobate thin films on insulator / V. Ya. Shur, B. N. Slautin, N. Zhu // Сборник тезисов Девятой Международной конференции «Кристаллофизика и деформационное поведение перспективных материалов», Москва, Россия, 22-26 ноября, 2021, – С. 195. – 0,1 п.л. / 0,02 п.л.
7. Слаутин, Б. Н. Рост доменов при локальном переключении на неполярном срезе тонких пленок ниобата лития на изоляторе / Б. Н. Слаутин, Н. Zhu, В. Я. Шур // Труды XXVI Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника», Нижний Новгород, Россия, 14-17 марта, 2022, – Т. 1. – С. 484-485. – 0,1 п.л. / 0,02 п.л.
8. Periodically Poled Ferroelectric Crystals and Thin Films for Nonlinear Optical Conversions and Controlling of Coherent Light / V. Shur et al. // Abstracts of the 28th International Conference on Advanced Laser Technologies (ALT'21), Moscow, Russia, September 06-10, 2021, – P. 134. – 0,1 п.л. / 0,02 п.л.