

На правах рукописи

**НЕРАДОВСКИЙ Максим Михайлович**

**СОЗДАНИЕ И ИССЛЕДОВАНИЕ ОПТИЧЕСКИХ ВОЛНОВОДОВ  
С РЕГУЛЯРНОЙ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРОЙ  
В НИОБАТЕ ЛИТИЯ**

01.04.07 – Физика конденсированного состояния

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Екатеринбург – 2016

Работа выполнена на кафедре компьютерной физики и в лаборатории сегнето-электриков отдела оптоэлектроники и полупроводниковой техники НИИ физики и прикладной математики Института естественных наук ФГАОУ ВПО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина» и в лаборатории физики конденсированного состояния Университета Ниццы-Софии Антиполис

Научные руководители – доктор физико-математических наук, профессор  
**Шур Владимир Яковлевич;**  
PhD, профессор,  
**Марк Де Мишели**

Официальные оппоненты – **Кострицкий Сергей Михайлович,**  
доктор физико-математических наук,  
доцент, технический директор  
Зеленоградского отделения ООО Научно-производственная компания "Оптолинк"

**Волынцев Анатолий Борисович,**  
доктор физико-математических наук, профессор,  
ФГБОУ ВО «Пермский государственный национальный  
исследовательский университет»,  
заведующий кафедрой физики твердого тела

Ведущая организация – Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Южно-Уральский государственный университет» (национальный исследовательский университет)

Защита состоится «17» июня 2016 г. в 17 ч 00 мин на заседании диссертационного совета Д **212.285.02** на базе ФГАОУ ВПО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина» по адресу: 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, д. 19, ауд. И-420 (зал Ученого совета).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВПО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», <http://lib.urfu.ru/mod/data/view.php?id=51&rid=256085>

Автореферат разослан «    » 2016 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета



Ищенко Алексей Владимирович

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### Актуальность темы исследования и степень ее проработанности

Монокристаллы семейства ниобата лития ( $\text{LiNbO}_3$ , LN) рассматриваются в качестве основного материала для создания элементов интегрально-оптических схем (ИОС), благодаря уникальному сочетанию акустооптических, электрооптических, нелинейно-оптических, фотоупругих и фотоэлектрических свойств.

Распространение оптического излучения по канальным волноводам через регулярную доменную структуру (РДС) в LN позволит значительно усилить эффективность нелинейно-оптических процессов. Создание ИОС на основе волноводов с РДС в LN позволит перейти на качественно новый уровень управления сигналами, передаваемыми по оптическому волокну.

Обширный набор методов создания волноводов в LN позволяет с высокой точностью контролировать их параметры. К наиболее широко применяемым методам относятся: диффузия титана и протонный обмен, а также имплантация ионов высоких энергий и лазерная запись. Созданные методом мягкого протонного обмена (SPE) волноводы обладают малыми потерями, высокой степенью оптической локализации и применимы для лазерного излучения с длиной волны, лежащей в полосе пропускания телекоммуникационных систем.

Существует два альтернативных подхода к изготовлению волноводов с РДС: создание доменной структуры (ДС) в кристалле с канальными волноводами и создание волноводов в кристалле с РДС. Для реализации первого подхода нужно исследовать особенности кинетики ДС в кристалле с модифицированным поверхностным слоем. Второй подход требует изучения влияния протонного обмена на РДС.

Доменная инженерия является активно развивающейся отраслью науки и технологии по созданию в сегнетоэлектрических материалах стабильной ДС с заданными геометрическими параметрами. Основным методом создания РДС в LN является приложение внешнего электрического поля с помощью системы электродов, изготовленных с использованием фотолитографии. Этот метод позволяет формировать РДС с периодом до 4 мкм, однако для создания ряда нелинейно-оптических устройств и фотонных кристаллов нужны субмикронные периоды, что стимулирует разработку альтернативных методов. Кроме того, существенные отличия кинетики ДС в волноводах затрудняют использование классических методов создания РДС. Недавно показано, что использование сфокусированного электронного луча является одним из наиболее перспективных методов формирования РДС с субмикронными периодами.

Кинетика ДС при переключении поляризации в сегнетоэлектрических материалах под действием электрического поля может быть рассмотрена как аналог фазового перехода первого рода, и является важной фундаментальной задачей физики конденсированного состояния.

Таким образом, комплексное исследование воздействия процесса протонного обмена на РДС, а также на кинетику ДС при переключении поляризации при приложении внешнего электрического поля и при облучении сфокусированным электронным лучом актуально как для практического применения, так и для решения фундаментальных задач.

**Целью работы** являлось исследование влияния волноводов, полученных различными вариантами метода протонного обмена, на параметры ДС и на кинетику доменов при переключении поляризации в LN.

**Основные задачи:**

1. Исследовать влияние мягкого протонного обмена на регулярную ДС в монокристаллах ниобата лития.
2. Исследовать кинетику ДС при переключении поляризации в монокристаллах ниобата лития с планарными волноводами, полученными различными вариантами протонного обмена.
3. Исследовать процесс создания ДС сфокусированным электронным лучом в планарных волноводах, полученных методом мягкого протонного обмена.
4. Исследовать процесс формирования регулярной ДС в канальных волноводах, полученных методом мягкого протонного обмена.
5. Измерить в канальных волноводах, полученных методом мягкого протонного обмена, с регулярной ДС генерацию второй гармоники лазерного излучения с длиной волны в полосе пропускания для телекоммуникационных систем.

**Объекты исследования.** Исследовались влияние протонного обмена на РДС в LN и особенности кинетики ДС в LN с волноводами, полученными различными вариантами протонного обмена при переключении поляризации приложением внешнего электрического поля и при помощи сфокусированного электронного луча.

**Научная новизна работы** заключается в том, что

1. Впервые выявлено формирование приповерхностной нанодоменной структуры в результате создания градиентных волноводов. Предложен способ, не приводящий к формированию нанодоменов.
2. Показано, что изменение толщины слоя протонного обмена и величины превышения поля переключения над пороговым значением качественно изменяет кинетику доменной структуры.
3. Впервые обнаружено гигантское уменьшение порогового поля, вызванное наличием внутреннего поля смещения в приповерхностных слоях с градиентом спонтанной поляризации, созданным протонным обменом в ниобате лития.
4. Впервые при помощи сфокусированного электронного луча создана регулярная доменная структура в канальных волноводах, и продемонстрирована возможность создания доменов произвольной формы в планарных волноводах.
5. В канальных градиентных волноводах с регулярной ДС получена генерация второй гармоники излучения с длиной волны в полосе пропускания телекоммуникационных систем.

**Практическая значимость:**

1. Полученные результаты будут использованы для создания оптических волноводов с регулярной доменной структурой в ниобате лития.
2. Изученные особенности кинетики доменной структуры в ниобате лития с волноводами, созданными методами протонного обмена, при переключении поляризации приложением внешнего электрического поля позволят оптимизировать методы создания регулярной доменной структуры.
3. Разработанный способ формирования регулярной доменной структуры при воздействии фокусированного электронного луча в ниобате лития с градиент-

ными канальными волноводами будет использован для изготовления интегрально-оптических устройств.

**Теоретическая значимость:**

1. Исследован процесс формирования приповерхностной нанодоменной структуры при создании градиентных волноводов.
2. Выявлены стадии формирования доменной структуры при облучении сфокусированным электронным лучом ниобата лития, покрытого слоем резиста.
3. Обнаружено гигантское уменьшение порогового поля, вызванное наличием внутреннего поля смещения в приповерхностных слоях с градиентом спонтанной поляризации, созданным протонным обменом.

**Положения, выносимые на защиту:**

1. В градиентных канальных волноводах, изготовленных методом мягкого протонного обмена, нарушается выполнение условий фазового квазисинхронизма в регулярной доменной структуре за счет формирования нанодоменов под действием поля смещения, созданного градиентом спонтанной поляризации.
2. Уменьшение градиента показателя преломления в волноводе позволяет уменьшить поле смещения ниже порога образования нанодоменов и избежать деградации регулярной доменной структуры, приводящей к нарушению выполнения условий фазового квазисинхронизма.
3. Гигантское уменьшение порогового поля зародышеобразования в ниобате лития за счет создания градиентного планарного волновода методом мягкого протонного обмена, вызвано формированием в приповерхностном слое незаэкранированного деполяризующего поля.
4. Дискретное переключение поляризации в ниобате лития со ступенчатыми планарными волноводами вызвано уменьшением эффективности внешнего экранирования деполяризующих полей, а формирование и рост доменных лучей при наличии градиента поляризации вызваны неэффективным объемным экранированием.

**Методология и методы.** Подробные экспериментальные исследования кинетики и статистики доменной структуры были получены с использованием современного высокоточного аналитического оборудования. Визуализация кинетики доменной структуры осуществлена с помощью поляризационного микроскопа при приложении внешнего электрического поля. Статическая поверхностная доменная структура была визуализирована при помощи сканирующей микроскопии пьезоэлектрического отклика и после селективного травления при помощи сканирующей электронной микроскопии, доменная структура в объеме кристалла – при помощи конфокальной микроскопии комбинационного рассеяния. Создание доменной структуры в градиентных волноводах было произведено сфокусированным электронным лучом. Исследование генерации второй гармоники производилось с помощью перестраиваемого лазера и детекторов.

**Достоверность полученных результатов.** При проведении измерений использовалось поверенное и калиброванное оборудование. Надежность результатов экспериментов подтверждена высокой статистической достоверностью полученных данных, для обработки которых использованы современные методы, а также тем,

что они согласуются с результатами других авторов, и не противоречат известным физическим моделям.

**Апробация результатов.** Основные результаты были представлены на 20 Всероссийских и международных конференциях и симпозиумах: 10<sup>th</sup> International Symposium on Ferroic Domains (20-24.09.2010 Prague, Czech Republic); XIX и XX Всероссийских конференциях по физике сегнетоэлектриков (20-23.06.2011, Москва, и 18-22.08.2014, Красноярск); 12<sup>th</sup> and 13<sup>th</sup> European Meeting on Ferroelectricity (26.06-02.07.2011, Bordeaux, France and 28.06-03.07.2015, Porto, Portugal), 21<sup>st</sup> International Symposium on the Applications of Ferroelectrics with 11<sup>th</sup> European Conference on Applications of Polar Dielectrics with International Symposium Piezoresponse Force Microscopy and Nanoscale Phenomena in Polar Materials (16-20.07.2012 Aveiro, Portugal), Joint international symposium “11<sup>th</sup> International Symposium on Ferroic Domains and Micro- to Nanoscopic Structures” and “11<sup>th</sup> Russia/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity” (20-24.08.2012, Ekaterinburg), Joint UFFC, EFTF and PFM Symposium (21-25.07.2013, Prague, Czech Republic), 13<sup>rd</sup> International Meeting on Ferroelectricity (02-06.09.2013, Krakow, Poland), XIV и XVI Всероссийских школах-семинарах по проблемам физики конденсированного состояния вещества (20-26.11.2013 и 12-19.11.2015, Екатеринбург), European Conference on Applications of Polar Dielectrics (07-11.07.2014, Vilnius, Lithuania), International Conference "Piezoresponse Force Microscopy and Nanoscale Phenomena in Polar Materials" combined with International Youth Conference "Functional Imaging of Nanomaterials" (14-17.07.2014, Ekaterinburg), XIX Российском симпозиуме по растровой электронной микроскопии и аналитическим методам исследования твердых тел (1-5.06.2015, Черноголовка), The International Workshop “Phase Transitions and Inhomogeneous States in Oxides” (22-25.06.2015, Kazan), 12<sup>th</sup> Multinational Congress on Microscopy (23-28.08.2015, Eger, Hungary), International Workshop “Modern Nanotechnologies” (27-29.08.2015, Ekaterinburg), 8<sup>th</sup> International Seminar on Ferroelastic Physics (13-16.09.2016, Voronezh), 7<sup>th</sup> International Symposium on Optical Materials (29.02-4.03.2016, Lyon, France), 18<sup>th</sup> European Conference on Integrated Optics (18-21.05.2016, Warsaw, Poland).

**Публикации и личный вклад автора.** Основные результаты исследований опубликованы в 35 печатных работах (в том числе в пяти статьях в рецензируемых научных журналах из перечня ВАК и в 30 тезисах Всероссийских и международных конференций). Диссертационная работа выполнена в рамках соглашения на написание диссертации под двойным научным руководством между Университетом Ниццы София Антиполис в лаборатории физики конденсированного состояния и Уральским федеральным университетом имени первого Президента России Б.Н. Ельцина в лаборатории сегнетоэлектриков отдела оптоэлектроники и полупроводниковой техники Института естественных наук с использованием оборудования Уральского ЦКП «Современные нанотехнологии» УрФУ в рамках исследований, проводимых при частичной поддержке РФФИ (грант 10-02-00627-а, 11-02-91066-НЦНИ\_а, 11-02-91174-ГФЕН\_а, 12-02-31377-мол\_а, 14-02-90447-Укр-а, 14-02-31864-мол-а, 15-32-21102-мол\_а\_вед), Российского научного фонда (грант 14-12-00826), Министерства образования и науки Российской Федерации (гранты 02.740.11.0171, 16.552.11.7020, 14.513.12.0006).

**Основные результаты работы** были получены лично автором. Выбор направления исследований, обсуждение результатов и формулировка задач проводились с научными руководителями профессором В.Я. Шуром и М.Р. De Micheli. Модификация монокристаллов ниобата лития методом протонного обмена, исследование оптических свойств и визуализация ДС методом силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика проводились лично автором. Создание канальных волноводов проводились совместно с Florian Doutre. Создание и визуализация ДС методом сканирующей электронной микроскопии проводились совместно с с.н.с. Д.К. Кузнецовым и с.н.с. Д.С. Чезгановым. Визуализация ДС методом конфокальной микроскопии комбинационного рассеяния проводилась совместно с с.н.с. П.С. Зеленовским и с.н.с. Д.О. Аликиным. Измерения спектров ГВГ проводились совместно с Pascal Baldi, Herve Tronche и Е.А. Колчиной.

**Структура и объем диссертации.** Диссертационная работа состоит из введения, 6 глав, заключения, списков цитируемой литературы, условных обозначений и опубликованных работ. Общий объем работы составляет 136 страницы, включая 89 рисунков, 3 таблиц, список условных обозначений, опубликованных работ и библиографию из 140 наименований.

### **ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

**Во введении** показана актуальность проведенных исследований, определены цель и основные задачи диссертационной работы, выделен исследуемый объект, представлены практическая значимость и научная новизна результатов работы. Указаны выносимые на защиту основные научные положения. Приведена информация об апробации работы, личном вкладе автора, структуре и объеме диссертации.

**Первая глава** представляет собой обзор литературы. В ней изложены основные физические свойства ниобата лития. Описан кинетический подход, используемый для описания кинетики ДС при переключении поляризации в сегнетоэлектриках [1], согласно которому движущей силой процесса зародышеобразования является сумма приложенного, деполяризирующего и экранирующего полей. В рамках кинетического подхода важным параметром является величина неэффективности экранирования  $R$ , представляющая собой отношение скорости переключения к скорости объемного экранирования. При неэффективном экранировании ( $R \gg 1$ ) процесс переключения становится сильно неравновесным, что приводит к «дискретному» переключению и формированию самоорганизованных нанодоменных структур [2]. Представлены особенности кинетики ДС при облучении полярной поверхности сфокусированным электронным лучом [3].

Описаны основные методы создания волноводов в LN [4]. Рассмотрены особенности известных вариантов протонного обмена (PE): (а) жесткий (HPE) [4], (б) с последующим отжигом (APE) [4], (в) обратный (RPE) [5], (г) мягкий (SPE) [6], (д) мягкий с большим изменением показателя преломления (HISoPE) [7]. Возможны комбинации нескольких вариантов. Показано, что наибольший интерес для создания устройств нелинейной оптики представляет SPE. Среди преимуществ SPE волноводов: (а) сохранение нелинейно-оптических коэффициентов во всем объеме волновода [6], (б) большая электрооптическая эффективность волноводов [8], (в) возможность создавать изогнутые канальные волноводы с малыми потерями [9].

Среди недостатков SPE волноводов несимметричность профиля, приводящая к несимметричности оптических мод лазерного излучения [5].

Рассмотрены методы создания РДС в LN. Описаны основные преимущества метода создания сквозной РДС при приложении внешнего электрического поля к периодическим электродам [1]. При использовании данного метода минимальный полученный период сквозной РДС составляет около 4 мкм и около 1 мкм для несквозной РДС [1]. Показана возможность создания РДС при помощи сфокусированного электронного луча, что может быть использовано в качестве метода получения субмикронных периодов РДС, что позволит осуществлять основанные на распространении обратно идущей волны нелинейно-оптические (НЛО) процессы.

Описаны основные современные экспериментальные методы исследования кинетики и статики ДС. Оптическая поляризационная микроскопия (ОПМ) позволяет проводить *in situ* визуализацию кинетики ДС с высоким разрешением по времени [10]. Селективное химическое травление позволяет выявлять статическую ДС в рельефе поверхности [10], визуализация которого осуществляется оптической микроскопией (ОМ), атомно-силовой микроскопией (АСМ) или сканирующей электронной микроскопией (СЭМ). Силовая микроскопия пьезоэлектрического отклика (СМПО) является неразрушающей методикой и позволяет визуализировать ДС с пространственным разрешением до 20 нм [10]. Конфокальная микроскопия комбинационного рассеяния (КМКР) света позволяет получать изображения ДС в объеме и проводить реконструкцию эволюции ДС [11].

Приведены основы нелинейно-оптических процессов, происходящих в LN с РДС. Описан эффект фазового квазисинхронизма, используемый для повышения эффективности преобразования длины волны лазерного излучения [12].

**Вторая глава** содержит основные характеристики исследуемых образцов, описание использованных приборов и установок, порядок проведения измерений и обработки результатов.

Исследуемые образцы представляли собой пластины ниобата лития конгруэнтного состава (CLN), вырезанные перпендикулярно полярной Z-оси, толщиной 500 мкм. Для создания РДС до создания волноводов использовалось переключение поляризации приложением электрического импульса с помощью системы периодических электродов, нанесенных на  $Z^+$  поверхность (E-field poling), и сплошного электрода на  $Z^-$  поверхности. Процесс PE производился в вакуумированном циркониевом контейнере при температуре 300°C. В качестве источника протонов использовалась бензойная кислота, с добавлением определенного количества бензоата лития (LB). Для создания канальных волноводов перед PE на одну из полярных поверхностей образца наносилась маска SiO<sub>2</sub> толщиной около 200 нм.

Для исследования влияния процесса PE на РДС были созданы SPE волноводы с использованием разной концентрации LB. Был исследован процесс создания РДС при помощи сфокусированного электронного луча в канальных SPE волноводах на  $Z^-$  полярной стороне LN. Особенности кинетики ДС при переключении поляризации при приложении внешнего электрического поля были получены в планарных NISoPE и HPE волноводах с разной толщиной. Образец PPLN-SPE1sc-ch+ охлаждался после завершения PE с контролируемой скоростью около 5 °C/мин.

Скорость охлаждения других образцов превышала 15 °С/мин. Основные свойства образцов приведены в таблице 1.

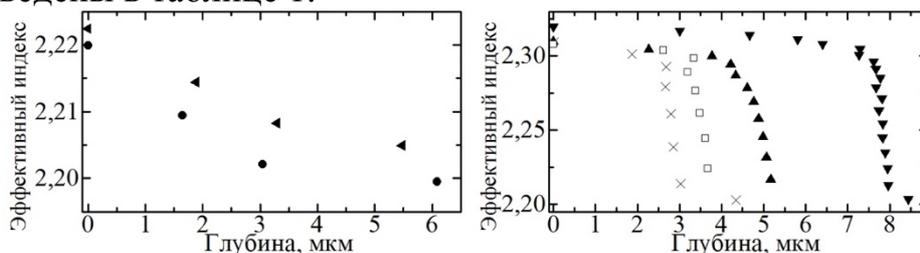


Рисунок 1 – Зависимость показателя преломления необыкновенной волны от глубины для (◄) LN-SPE1, (●) LN-SPE2, (×) LN-HISoPE, (□) LN-HPE1, (▲) LN-HPE2, (▼) LN-HPE3

Стандартный метод М-линий с призмными элементами связи и улучшенный метод iWKB [13] были использованы для определения профиля волновода – зависимости показателя преломления необыкновенной волны (эффективного индекса) от глубины для исследуемых образцов (Рисунок 1).

Как и ожидалось, для LN-SPE1 и LN-SPE2 профиль волновода представлял собой градиентную зависимость с более сильным изменением показателя преломления при меньшем содержании LB, для LN-HISoPE – ступенчатая зависимость приповерхностного слоя и градиентная после, LN-HPE1, LN-HPE2 – ступенчатая зависимость с увеличивающейся толщиной волновода при увеличении длительности процесса. Профиль LN-HPE3 кроме ожидаемой ступенчатой части обладал также и градиентной.

Таблица 1 – Основные параметры исследованных волноводов

	ДС до протонного обмена	Тип волноводов	Длительность PE, час	LB, %	Толщина PE, мкм
PPLN-SPE1-ch+	РДС	канальные на Z+	72	2,9	0,8
PPLN-SPE1sc-ch+	РДС	канальные на Z+	72	2,9	0,8
LN-SPE1-pl	монодомен.	планарные	72	2,9	0,8
PPLN-SPE2-ch+	РДС	канальные на Z+	72	3,1	0,6
LN-SPE2-ch-	монодомен.	канальные на Z-	72	3,1	0,6
LN-SPE2-pl	монодомен.	планарные	72	3,1	0,6
LN-HPE1	монодомен.	планарные	2	-	3,4
LN-HPE2	монодомен.	планарные	4	-	4,6
LN-HPE3	монодомен.	планарные	25	-	7,8
LN-HISoPE	монодомен.	планарные	17	2,2	2,7

Для *in situ* исследования кинетики ДС при переключении поляризации импульсом поля, приложенного с помощью жидких электродов (водного раствора LiCl), применялись поляризационный оптический микроскоп Carl Zeiss LMA10 (Carl Zeiss, Германия) и CCD видеокамера с частотой 25 кадров в секунду. Импульсы генерировались на плате ввода-вывода NI PCI-6251 (National Instruments, США) и усиливались высоковольтным усилителем TREK

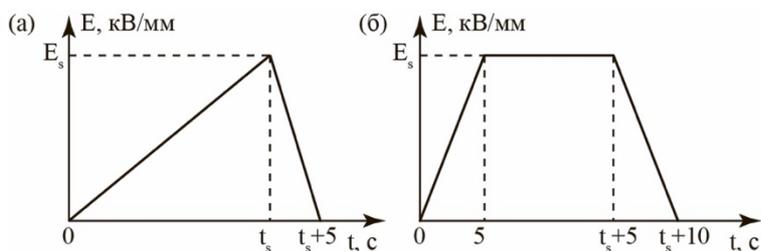


Рисунок 2 – Форма импульсов, применяемых для переключения поляризации: (а) в растущем поле, (б) в постоянном поле

20/20С (ТРЕК, США). Для синхронизации процессов записи и приложения электрического импульса использовался триггерный диод. Измерения проводились при переключении поляризации в растущем и постоянном поле (рисунок 2). Для переключения в растущем поле использовались импульсы с амплитудой  $E_s$  от 10 до 25 кВ/мм и скоростью нарастания поля  $dE_s/dt$  от 0,08 до 0,20 кВ/(мм×с). При переключении в постоянном поле  $E_s$  изменялось от 2,5 до 25 кВ/мм, а длительность  $t_s$  от 5 до 115 с.

Пороговые поля зародышеобразования  $E_{th.n}$  и ветвления  $E_{th.b}$  определялись из анализа изображений, как значения приложенного поля, при которых появлялись первые оптически различимые домены, и начиналось ветвление, соответственно. По мгновенным оптическим изображениям определялись размер и форма ДС, направление роста доменных лучей рассчитывалось по анализу угловой свертки Фурье преобразование оптического изображения итоговой ДС.

Селективное травление ДС производилось в концентрированной плавиковой кислоте (HF) в течение 60 секунд при комнатной температуре. Эксперименты по ОМ проводились с помощью оптического поляризационного микроскопа Olympus BX-51 (Olympus Corporation, США). Исследования топографии образца методами АСМ, статической ДС методами СМПО и эксперименты по локальному переключению поляризации были проведены с помощью зондовой нанолaborатории NTEGRA Aura (NT-MDT, Россия) и СЗМ MFP 3D (Asylum research, Oxford Instruments, США). Использовались зондовые датчики NSG-10/Pt (NT-MDT, Россия) с резонансной частотой ~240 кГц и радиусом закругления острия менее 35 нм. Характеристики модулирующего напряжения для СМПО: амплитуда  $U_{mod}$  от 5 до 10 В и частота  $f_{mod}$  от 20 до 100 кГц. Для локального переключения поляризации использовались прямоугольные импульсы длительностью  $t_{sw}$  от 10 мс до 100 с и амплитудой  $U_{sw}$  от 10 до 200 В. КМКР исследования проводились с помощью зондовой нанолaborатории NTEGRA Spectra (NT-MDT, Россия) с использованием He-Ne лазера с длиной волны 632,8 нм мощностью 9 мВт и дифракционной решетки 1800 штрих/мм со спектральным разрешением 0,8 см<sup>-1</sup>.

Для создания ДС сфокусированным электронным лучом использовался сканирующий электронный микроскоп Auriga Crossbeam workstation (Carl Zeiss, Германия), оборудованный системой электронно-лучевой литографии Elphy Multibeam (Raith, Германия). На Z<sup>-</sup> поверхность наносился слой резиста AZ nlof 2020 Microchemicals толщиной 2,5 мкм. Были созданы двумерные матрицы точек и полосовые регулярные структуры. Диаметр электронного луча составлял 10 нм. При экспозиции точек позиция электронного луча была фиксирована, а полосовые домены были получены при растровой развертке луча. Образцы облучались при ускоряющем напряжении 10 кВ и токе электронного луча 1,3 нА. Доза облучения (количество заряда) для точек определялась как  $D_d = I \times t$ , а для полосовых доменов – как  $D_s = I \times t / S$ , где  $t$  – время экспонирования,  $S$  – площадь полосы. Исследование ГВГ проводилось с помощью перестраиваемого лазера TUNICS T100S-HP и усилителя KEOPSYS. Длина волны лазерного излучения изменялась от 1530 нм до 1570 нм, мощность 100 мВт. Нормированная эффективность преобразования определялась как  $\eta = P_o / (P_{2\omega} \times L^2) \times 100\%$ , где  $P_o$  и  $P_{2\omega}$  – мощности лазерного излучения на фундаментальной и удвоенной частотах, соответственно, а  $L$  – длина РДС.

В третьей главе приводятся результаты исследования влияния процесса РЕ обмена на РДС. Визуализация статической ДС с помощью СМПО позволила обнаружить нанодомены на границах канальных волноводов в PPLN-SPE1-ch+ на  $Z^+$  полярной поверхности (Рисунок 3а,б,в). СЭМ визуализация показала, что ДС представляет собой плотную структуру, состоящую из нанодоменов размерами  $20 \pm 5$  нм треугольной формы с доменными стенками, ориентированными вдоль  $X$  кристаллографических направлений. Не было обнаружено образования нанодоменов на  $Z^-$  поверхности (Рисунок 3г). Локальное переключение поляризации в образце PPLN-SPE1-ch+ в области волновода (Рисунок 4а) и в области с исходным LN (Рисунок 4б) позволило определить зависимости радиуса домена  $r$  от амплитуды  $U_{sw}$  (Рисунок 4в) и длительности  $t_{sw}$  (Рисунок 4г) импульса.

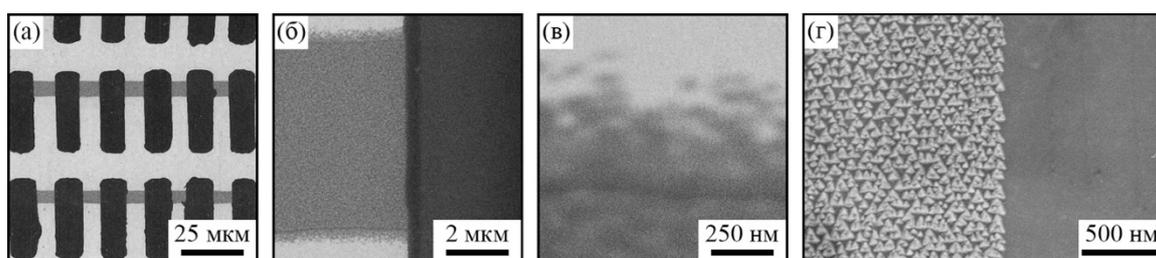


Рисунок 3 – Изображения ДС: (а),(б),(в) СМПО и (г) СЭМ в образце LN-SPE1-ch

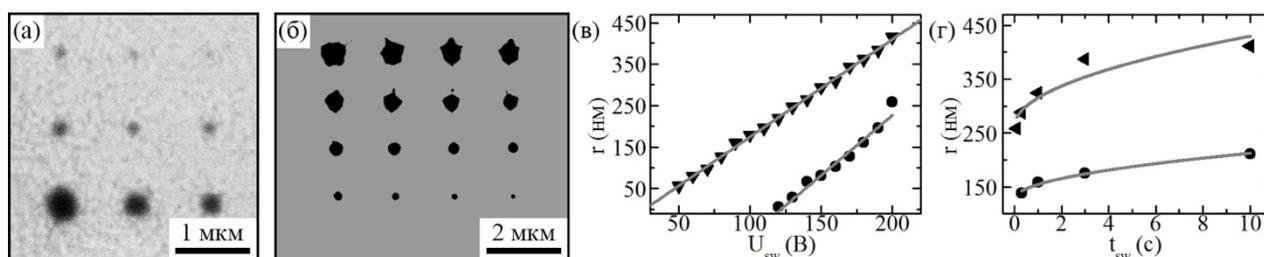


Рисунок 4 – Типичные матрицы изолированных доменов, полученные локальным переключением поляризации: (а) внутри волновода (круги) и (б) вне волновода (треугольники). Зависимость радиуса домена: (в) от амплитуды и (г) от длительности импульса. Образец LN-SPE1-ch

Для аппроксимации зависимостей  $r(t_{sw})$  и  $r(U_{sw})$  было использовано выражение, полученное в [14]:

$$r(U_{sw}) = a \times (U_{sw} - U_{th}) \text{ и } r(t_{sw}) = b \times t_{sw}^{0,5} + c, \quad (1)$$

Обработка результатов позволила установить, что в волноводе пороговое напряжение  $U_{th} = 20$  В, а в области вне волновода  $U_{th} = 120$  В. Увеличение  $U_{th}$  может быть отнесено за счет облегчения в волноводе обратного переключения после выключения внешнего поля, что приводит к полному исчезновению доменов, созданных приложением напряжений меньших порогового значения. Усиление эффекта обратного переключения может быть вызвано менее эффективным объемным экранированием в модифицированном слое.

Недостаточная разрешающая способность метода КМКР не позволила измерить глубину полученной ДС. Поэтому был изготовлен косой шлиф образца LN-SPE1-pl, полировкой под углом 6 минут. ДС на поверхности была визуализирована методом СЭМ (Рисунок 5). Анализ полученных изображений позволил установить, что домены имеют форму треугольных пирамид и среднюю длину около 15 мкм. Очевидно, что формирование такой ДС в волноводе приводит к дополнительным потерям, и не позволяет выполнить условие фазового квазисинхронизма.

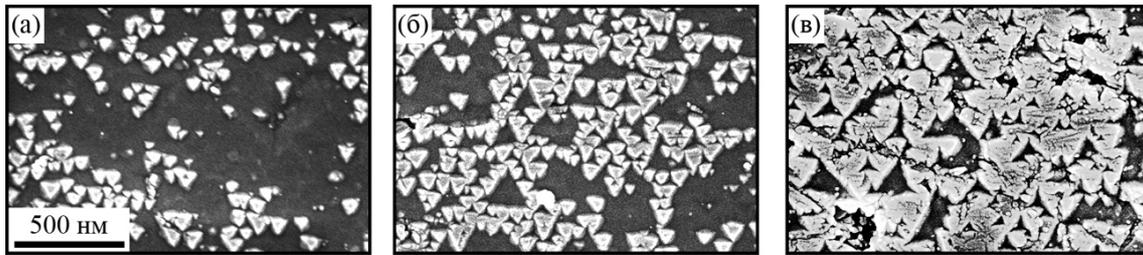


Рисунок 5 – СЭМ изображения ДС в LN-SPE1-pl (а) на поверхности и на глубине (б) 3,5 мкм, (в) 12 мкм. Черные треугольные домены уменьшаются с глубиной

Изменение температуры при РЕ должно приводить к появлению пироэлектрического поля, которое может изменять ДС. Для минимизации этого эффекта было проведено более медленное охлаждение образца LN-SPE1sc -ch+ с контролируемой скоростью 5 °С/мин (в три раза медленнее, чем других исследованных образцов). Однако, и в этом случае методами СМПО внутри волновода была обнаружена нерегулярная структура микродоменов (Рисунок 6а,б).

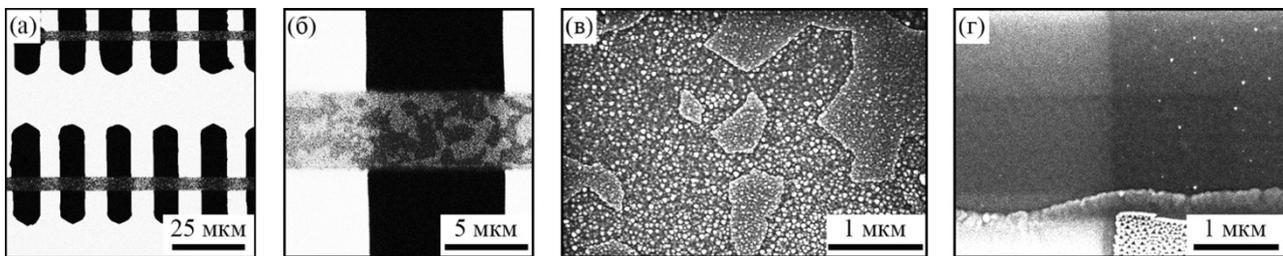


Рисунок 6 – Изображения ДС: (а),(б) СМПО и (в),(г) СЭМ. (а),(б),(в) в PPLN-SPE1sc-ch+, (г) в PPLN-SPE2-ch+

Методами СЭМ после селективного травления было установлено, что микродомены состояли из нанодоменов со средним поперечным размером около 20 нм (Рисунок 6в). Таким образом, уменьшение скорости охлаждения не позволило избежать повреждения РДС, вызванного протонным обменом.

Градиентная зависимость показателя преломления от глубины свидетельствует о неоднородности спонтанной поляризации в полярном направлении. Встроенное внутреннее электрическое поле, создаваемое градиентом спонтанной поляризации, может являться причиной формирования микро- и нанодоменных структур в градиентных волноводах.

Методами СЭМ была исследована ДС образца PPLN-SPE2-ch+ (Рисунок 6г), полученного при использовании увеличенного количества LB, что уменьшает величину градиента профиля волновода. В этом случае концентрация нанодоменов была пренебрежимо малой. Важно отметить, что отдельные нанодомены, образовавшиеся внутри волновода в  $Z^+$  области (Рисунок 6г, справа вверху), не приводили к заметному увеличению потерь и нарушению условий фазового квазисинхронизма.

Для объяснения формирования нанодоменных структур в процессе РЕ было исследовано влияние различных вариантов РЕ на величину порогового поля зародышеобразования ( $E_{th,n}$ ) для образцов LN-HPE3, LN-SPE1-pl и LN-HISoPE при переключении поляризации в поле, растущем со скоростью  $dE/dt = 0,2$  кВ/(мм·с) (Рисунок 2а). Ранее проведенные исследования переключения поляризации в LN со ступенчатым поверхностным волноводом с однородными свойствами показали, что увеличение толщины такого слоя [15], приводило к незначительному увеличению  $E_{th,n}$  по сравнению с исходным CLN. Проведенные нами исследования в CLN с градиентными

PE слоями позволили впервые обнаружить эффект гигантского уменьшения порогового поля (Таблица 2).

Таблица 2 – Пороговые поля зародышеобразования исследованных волноводов, измеренные при скорости нарастания поля 0,2 кВ/(мм·с)

Образец	Пороговое поле $E_{th,n}$ , кВ/мм	Профиль волновода	Ссылки
LN-HPE2	21,6	ступенчатый	[15]
LN-HPE1	21,3	ступенчатый	[15]
CLN	21,0	без волновода	[1]
LN-HISoPE	5,2±0,3	ступенчатый и градиентный	-
LN-HPE3	4,2±0,1	ступенчатый и градиентный	-
LN-SPE1-pl	2,8±0,1	градиентный	-

Так для образца LN-SPE1-pl при  $dE/dt = 0,08$  кВ/(мм с) пороговое поле уменьшилось более чем в десять раз. Наблюдаемый эффект можно отнести за счет действия поля смещения, создаваемого градиентом спонтанной поляризации в модифицированном поверхностном слое, и облегчающего переключение поляризации. Эффект уменьшения порогового поля наиболее сильно выражен в волноводе с градиентным профилем, поскольку в этом случае существует градиент спонтанной поляризации непосредственно вблизи поверхности и создаваемое им поле облегчает процесс зародышеобразования (Рисунок 1).

**Четвертая глава** содержит результаты исследования особенностей кинетики ДС при переключении поляризации в монокристаллах CLN с поверхностным слоем, модифицированным различными вариантами протонного обмена.

**Жесткий протонный обмен (HPE).** Кинетика ДС в постоянном поле, зависит от толщины модифицированного слоя и от величины  $\Delta E_{ex} = E_s - E_{th}$  - превышения приложенного поля  $E_s$  над пороговым полем  $E_{th}$ .

В LN-HPE1 при слабом превышении поля переключения ( $\Delta E_{ex} \sim 0$ ) эволюция ДС начиналась с образования зародышей по всей области электрода (Рисунок 7а) и продолжалась ростом изолированных шестиугольных доменов (Рисунок 7б). Средняя скорость роста доменов составляла 0,4 мкм/с (Рисунок 7в). КМКР изображение статической ДС (Рисунок 7г), позволило обнаружить перед доменной стенкой полосу изолированных микро- и нано-доменов.

При среднем превышении поля переключения ( $\Delta E_{ex} = 1,2$  кВ/мм) под краем электрода образовывались изолированные домены неправильной формы с широкой доменной границей (ШДГ) (Рисунок 8). Средняя скорость бокового роста доменов с ШДГ составила 14 мкм/с (Рисунок 8г). Обнаружена анизотропия роста доменов: ШДГ медленнее разрастается в  $Y^-$  направлении, при этом появляются узкие, разрешимые при помощи оптического микроскопа доменные лучи («стримеры»), быстро растущие вдоль  $Y^+$  направления со скоростью до 120 мкм/с. В результате взаимодействия растущих стримеров формируется самоорганизованная квазирегулярная ДС (Рисунок 8в).

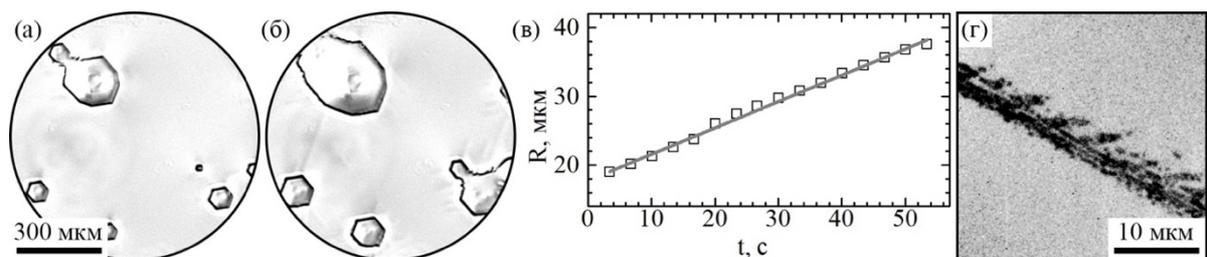


Рисунок 7 – Эволюция ДС в LN-NPE1 при  $\Delta E_{ex} \sim 0$ . Время, с: (а) 30, (б) 114. (v) Зависимость радиуса домена от времени. (г) КМКР изображение нанодоменов перед доменной стенкой

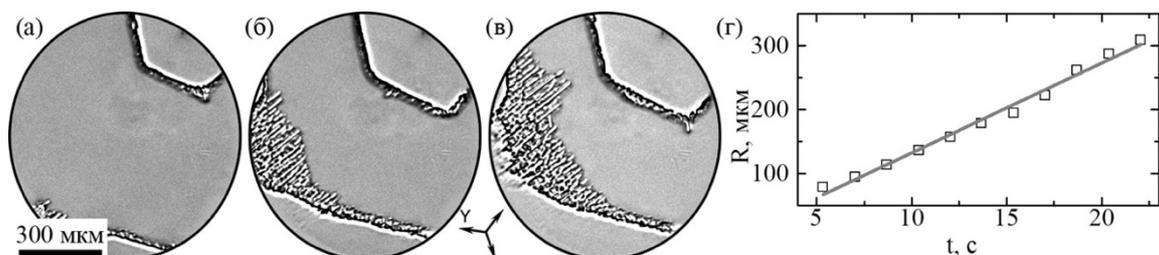


Рисунок 8 – Эволюция ДС при переключении в LN-NPE1. Время, с: (а) 26, (б) 30, (в) 32. (г) Зависимость положения ШДГ от времени.  $\Delta E_{ex} = 1,2$  кВ/мм

При высоком значении превышения поля переключения ( $\Delta E_{ex} = 1,7$  кВ/мм) наблюдался рост домена, сформированного под краем электрода (Рисунок 9). Боковой рост домена со скоростью 60 мкм/с происходил за счет слияния с появляющимися перед доменной стенкой изолированными доменами. Рост домена сопровождался неравномерным увеличением ширины ШДГ (Рисунок 9д): скорость изменения вдоль  $Y^+$  и  $Y^-$  направлений уменьшалась от 70 мкм/с до 10 мкм/с.

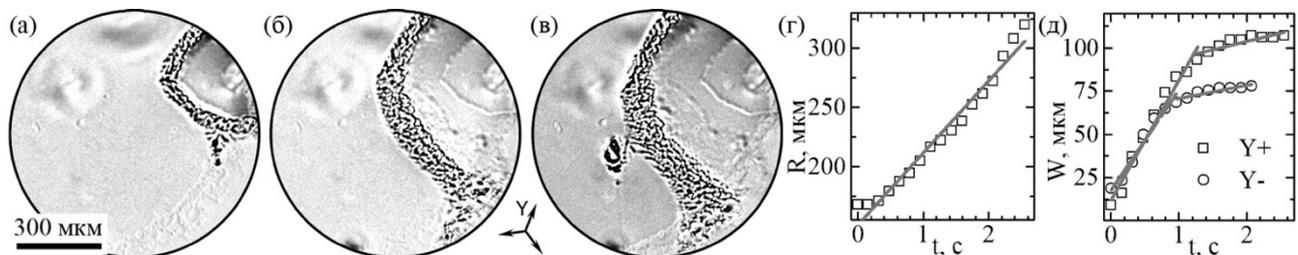


Рисунок 9 – Эволюция ДС при переключении в LN-NPE1. Время, с: (а) 0,7, (б) 2,4, (в) 4,0.  $\Delta E_{ex} = 1,7$  кВ/мм. Зависимости от времени переключения (г) размера (эффективного радиуса) растущего домена и (д) ширины доменной стенки в  $Y^+$  ( $\square$ ) и  $Y^-$  ( $\circ$ ) направлениях

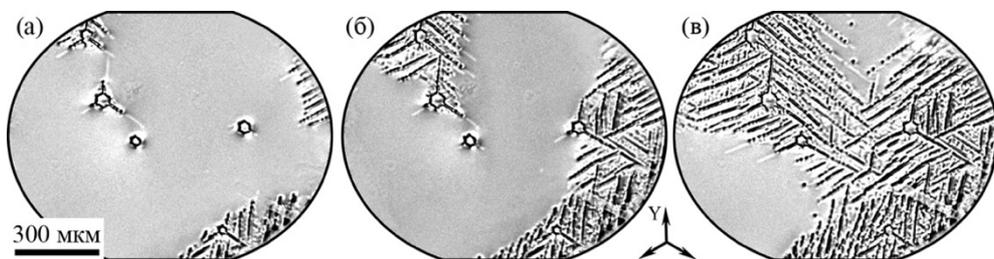


Рисунок 10 – Эволюция ДС при переключении поляризации с  $\Delta E_{ex} = 1,4$  кВ/мм в образце LN-NPE2. Время от начала (а) 11,5 с, (б) 13,1 с, (в) 15,0 с

В образце LN-NPE2 эволюция ДС начиналась с образования и роста доменов традиционной шестиугольной формы (Рисунок 10а). Рост шестиугольных доменов прекращался при размере домена около 20 мкм для  $\Delta E_{ex} = 1,4$  кВ/мм и 10 мкм для

$\Delta E_{ex} = 2,4$  кВ/мм. Дальнейшее переключение приводило к формированию стримеров и нанодоменных цепей на вершинах шестиугольного домена и их росту вдоль  $Y$  направлений. При  $\Delta E_{ex} = 1,4$  кВ/мм стримеры образовывались только на несмежных вершинах, а при  $\Delta E_{ex} = 2,4$  кВ/мм - на всех вершинах шестиугольника. Слияние стримеров и нанодоменных цепей приводило к образованию сетчатой ДС (Рисунок 10).

В образце LN-НРЕЗ при  $\Delta E_{ex} = 10,8$  кВ/мм выявлены три стадии роста ДС: (1) зародышеобразование, (2) рост доменных лучей, и (3) ветвление доменных лучей. Было выявлено отклонение направления роста доменных лучей на 3 градуса от  $Y$ -направления (Рисунок 11а,б). Анализ КМКР изображений полученной ДС на разной глубине позволил выявить четыре стадии ее формирования (Рисунок 11в,г,д): (1) образование самоорганизованных цепей микродоменов, (2) образование доменных лучей при слиянии изолированных доменов, (3) потеря стабильности доменной стенки при определенной ширине и, как следствие, дискретное переключение и слияние доменов, (4) формирование квазирегулярной ДС.

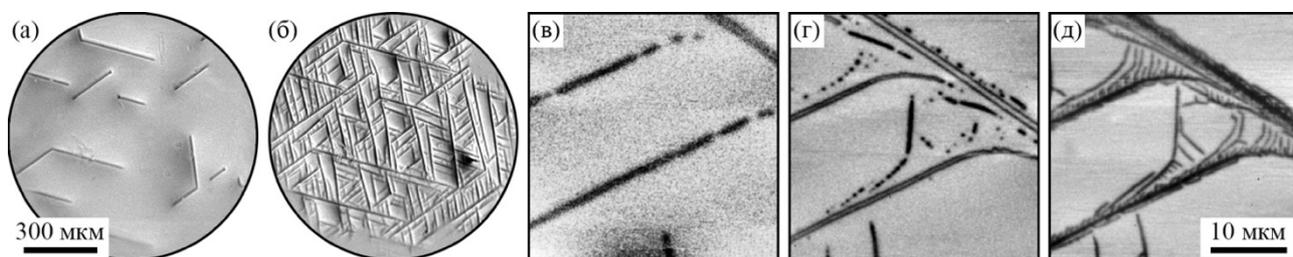


Рисунок 11 – Оптическая визуализация эволюция ДС при переключении поляризации, время от начала переключения: (а) 2 с, (б) 26 с. КМКР изображения результирующей ДС: (в) 105 мкм, (г) 20 мкм, (д) 6 мкм. Образец LN-НРЕЗ.  $\Delta E_{ex} = 10,8$  кВ/мм

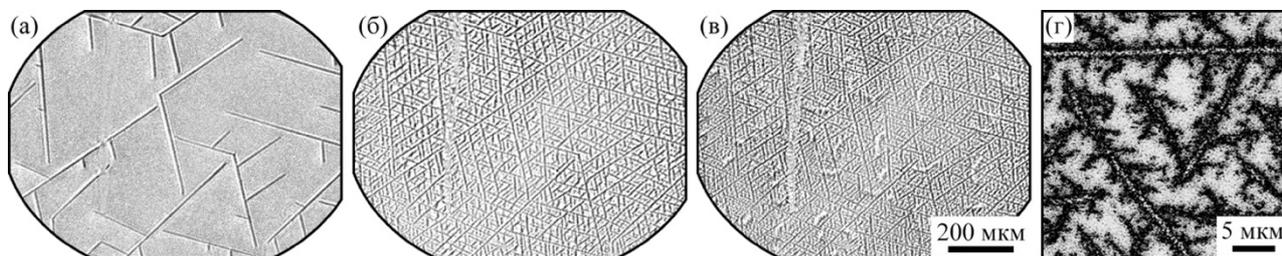


Рисунок 12 – Эволюция ДС при переключении поляризации в растущем поле в LN-SPE1-pl. Величина поля (а) 2,8 , (б) 4,6 , (в) 10,0 кВ/мм. (г) СМПО изображение итоговой ДС

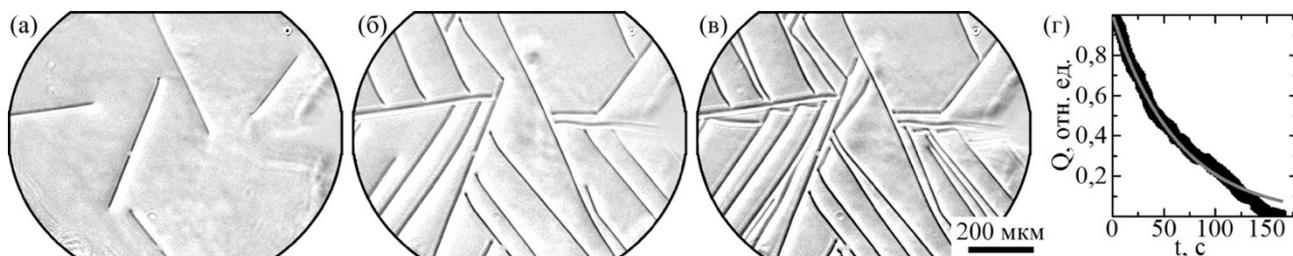


Рисунок 13 – Эволюция ДС при переключении поляризации в LN-SPE1-pl. Время от начала (а) 16 с, (б) 66 с, (в) 166 с. (г) Зависимость от времени нормированной суммарной длины доменных лучей: экспериментальные точки аппроксимированы зависимостью (2).  $\Delta E_{ex} = 2,5$  кВ/мм

**Мягкий протонный обмен (SPE).** Кинетика ДС в LN-SPE1-pl в растущем поле при скорости нарастания  $dE_s/dt = 0,2$  кВ/(мм×с) и амплитуде  $E_s = 10$  кВ/мм представляла собой образование доменов на  $Z^-$  полярной поверхности и непрерывный рост доменных лучей во всех трех  $Y$  направлениях (Рисунок 12). Ветвление лучей начиналось

в полях выше порогового  $E_{th.b} = 3,1$  кВ/мм (Рисунок 12б). Переключение поляризации на  $Z^+$  полярной поверхности происходило при  $E_s > 9,7$  кВ/мм. При помощи СМПО удалось обнаружить формирование дендритной ДС на  $Z^-$  полярной поверхности.

Эволюция ДС в LN-SPE1-pl при приложении постоянного поля с  $\Delta E_{ex} = 0,5$  кВ/мм состояла из трех стадий (Рисунок 13а,б,в): (1) зародышеобразование, (2) одномерный рост доменных лучей и (3) отражение растущих доменных лучей.

Для описания процесса роста была использована формула Колмогорова-Аврами для  $\beta$ -модели при одномерном росте. Нормированная длина доменных лучей была вычислена из мгновенных изображений ДС:  $q(t) = 1 - l(t)/l_{res}$ , где  $l_{res}$  – итоговая суммарная длина лучей,  $l(t)$  – суммарная длина лучей в каждый момент времени (Рисунок 13).

Экспериментальные данные были аппроксимированы зависимостью

$$q(t) = q_0 \exp(-t/t_{об}), \quad (2)$$

где  $t_{об}$  – характерная константа времени процесса переключения,  $t_{об} = 63,7 \pm 0,6$  с

Отклонение направлений роста лучей от кристаллографических X и Y направлений составляло около 6 градусов.

**Мягкий протонный обмен с большим изменением показателя преломления (HISoPE).**

В образце LN-HISoPE при приложении растущего поля выявлено три стадии кинетики ДС (Рисунок 14): (1) зародышеобразование, (2) рост доменных лучей, (3) ветвление. Определена величина порогового поля ветвления  $E_{th.b}$  и количество поколений ветвления. По анализу КМКР изображений на разной глубине итоговой ДС выявлено формирование симметричной ШДГ в результате слияния доменного луча с изолированными нанодоменами, возникающими в результате дискретного переключения.

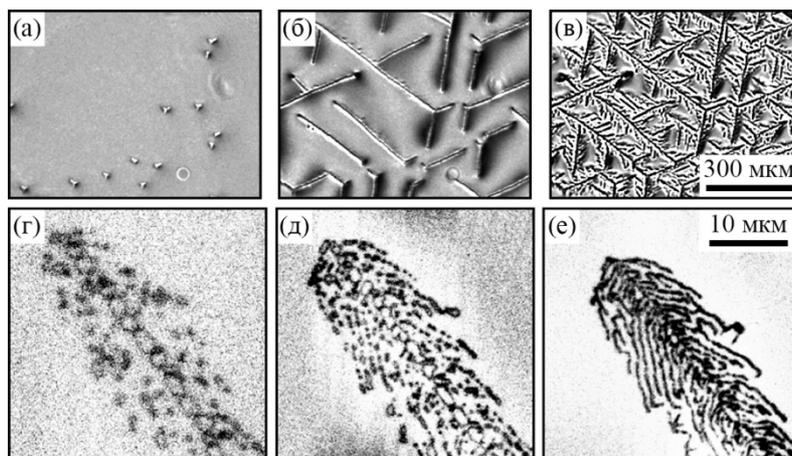


Рисунок 14 – Эволюция ДС при переключении поляризации в растущем поле в LN-HISoPE.  $\Delta E_{ex}$ , кВ/мм: (а) 8,5 (б) 13,4 (в) 19,4. КМКР визуализация итоговой ДС на глубине: (г) 20 мкм, (д) 6 мкм, (е) 3 мкм

В пятой главе приведены результаты создания ДС фокусированным электронным лучом в образцах LN-SPE2-pl и LN-SPE2-ch–.

Была создана тестовая полосовая ДС, ориентированная вдоль Y направления, с периодами изменяющимися в диапазоне от 3 мкм до 10 мкм с использованием доз от 0,1 до 1 мКл/см<sup>2</sup>, ширина зоны облучения составляла 0,5 мкм. Была измерена зависимость параметров ДС от дозы при помощи визуализации СМПО полярной поверхности после удаления слоя резиста (Рисунок 15).

При дозах от 0,1 до 0,7 мКл/см<sup>2</sup> было обнаружено формирование субмикронных доменов. Доля переключенных доменов в полосе уменьшалась от центра к краю. Увеличение дозы приводило к формированию более широких полос из-за

увеличения доли переключенных доменов и их слияния. Сплошная полоса формировалась при  $D_{s,th}$ . Необходимо отметить, что нанодомены существуют перед границей полосового домена при любых дозах.

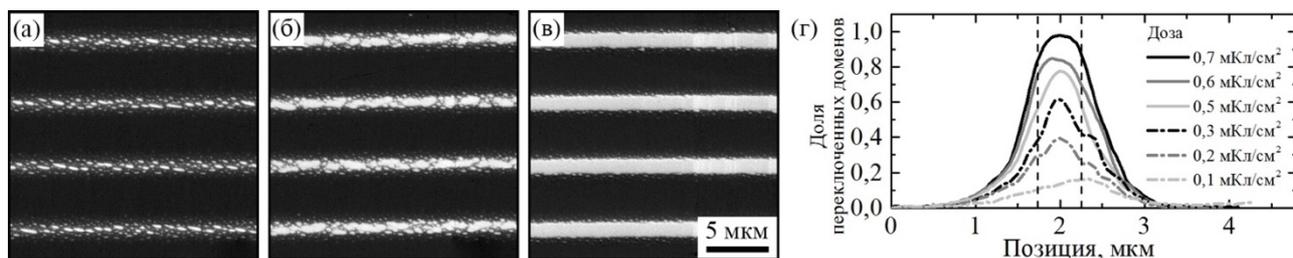


Рисунок 15 – СМПО изображение ДС после облучения электронным лучом с дозой, мКл/см<sup>2</sup>: (а) 0,4, (б) 0,7, (в) 1,0. (г) усредненный профиль доли переключенных доменов для различных доз

Получена типичная зависимость ширины полосы от дозы после полного слияния структуры с периодом 10 мкм (Рисунок 16а). Ширина полосы линейно зависит от дозы:

$$d(D_s) = d_{min} + B \cdot (D_s - D_{s,th}), \quad (3)$$

где  $d_{min}$  – минимальная ширина сплошной доменной полосы,  $D_{s,th}$  – пороговая доза для сплошной полосы,  $B$  – константа.

Взаимодействие доменов было изучено для дозы 2 мКл/см<sup>2</sup>. Увеличение ширины полосового домена наблюдалось только до периода 7 мкм. Наблюдаемая эволюция субмикронной ДС отнесена на счет дискретного переключения, вызванного неэффективным экранированием деполяризующего поля при наличии диэлектрического слоя (градиентного волновода), что аналогично наблюдаемым ранее процессам [1].

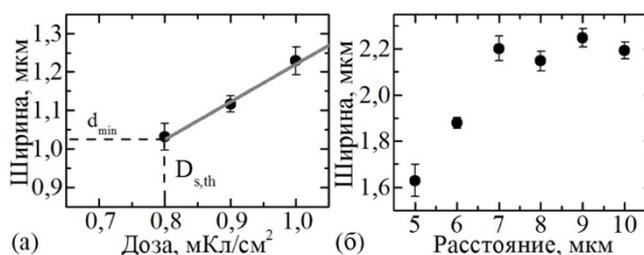


Рисунок 16 – Зависимость ширины полосовых доменов от (а) дозы и (б) периода

Выделены основные стадии формирования полосовых доменов: (1) дискретное переключение – возникновение в области облучения электронным лучом изолированных микродоменов с концентрацией, уменьшающейся от середины к краям, (2) слияние растущих изолированных доменов, (3) формирование полосового домена, (4) дальнейший рост полосового домена за счет безостановочного бокового движения доменной стенки, вызванного слиянием с изолированными микро- и нанодоменами, возникающими перед стенкой.

Было экспериментально показано, что слой резиста необходим для создания РДС в РЕ волноводах. Облучение LN без резиста при тех же параметрах не позволило формировать ДС. Как было показано, слой резиста приводил к дискретному переключению перед доменной стенкой, а слияние с изолированными доменами эквивалентно стохастическому зародышеобразованию и изотропному росту доменов.

Был изучен рост изолированных доменов после точечного облучения по матрице 10 x 10 с периодом 10 мкм и диапазоне доз от 10 до 100 пКл. При помощи СМПО было выявлено формирование круглых доменов на облученной поверхности. Отсутствие доменов на противоположной поверхности свидетельствовало о том, что домены несквозные. Увеличение дозы приводило к увеличению размеров круглых до-

менов (Рисунок 18). Полученная монотонная нелинейная зависимость размеров доменов от дозы аналогична результатам, полученным в MgOLN без волноводов [3]. Следует отметить, что домены, получаемые в LN-SPE, более стабильны, чем в MgOLN. Продемонстрирована возможность создания РДС с полосовыми доменами, ориентированными вдоль X кристаллографического направления, и доменное кольцо, что свидетельствует о возможности создания доменов произвольной формы в градиентных волноводах. Полученные результаты позволяют оптимизировать процедуру создания РДС в образце с градиентными канальными волноводами.

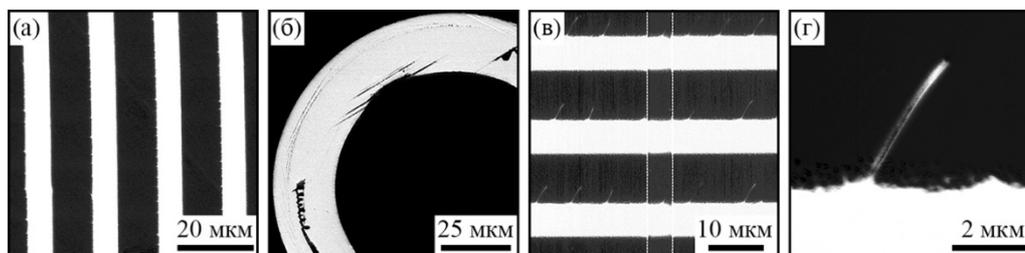


Рисунок 17 – СМПО изображения (а) РДС, ориентированной вдоль X-направления, (б) домена в форме кольца, (в) SPE волновода (вертикально), проходящего через РДС (горизонтально): исходное состояние – темное, полученная ДС – светлая, (г) пальцеобразного домена

В LN-SPE2-ch– была создана РДС с периодом от 15,8 до 16,4 мкм. Скважность ДС контролировалась подбором параметров облучения. Используемое оборудование позволяло получать ДС в области размерами 1,5 x 1,5 мм<sup>2</sup>. Для создания ДС большей площади использовалось передвижение предметного стола электронного микроскопа, что приводило к локальным нарушениям периодичности.

Метод СМПО позволил выявить, что создание ДС при помощи электронного луча практически одинаково в градиентном волноводе и вне его, что существенно отличается от полученных ранее результатов при создании ДС приложением электрического поля. Скважность полученной РДС была близка к 0,4.

Нестабильность формы доменной границы приводила к формированию квазипериодических пальцеобразных структур (Рисунок 17г) длиной 3 мкм со средним периодом 3,6 мкм, и изолированных субмикронных и нанодоменов.

**Шестая глава** посвящена исследованию генерации второй гармоники в градиентных канальных волноводах с РДС, полученной при облучении сфокусированным электронным лучом Z<sup>-</sup> полярной поверхности, покрытой слоем резиста.

Получены спектры ГВГ для канальных волноводов шириной 5, 6, 7 и 8 мкм, периодом РДС 16,0, 16,2 и 16,4 мкм и длиной 1,5 и 6,0 мм. Обнаруженное увеличение длины волны максимума пика ГВГ  $\lambda$  с увеличением ширины канального волновода  $W$  при постоянном периоде РДС  $\Lambda$  (Рисунок 19а), отнесено за счет роста эффективного показателя преломления волновода при увеличении его ширины. Увеличение длины волны максимума пика ГВГ при увеличении периода РДС согласуется с теорией (Рисунок 19б). Полуширина пиков ГВГ  $\sigma$  соответствует теоретическому значению, и уменьшается при увеличении длины РДС (Рисунок 19в).

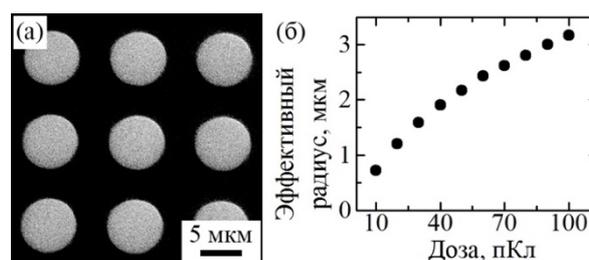


Рисунок 18 – (а) СМПО изображение после точечной экспозиции (б) зависимость эффективного радиуса от дозы

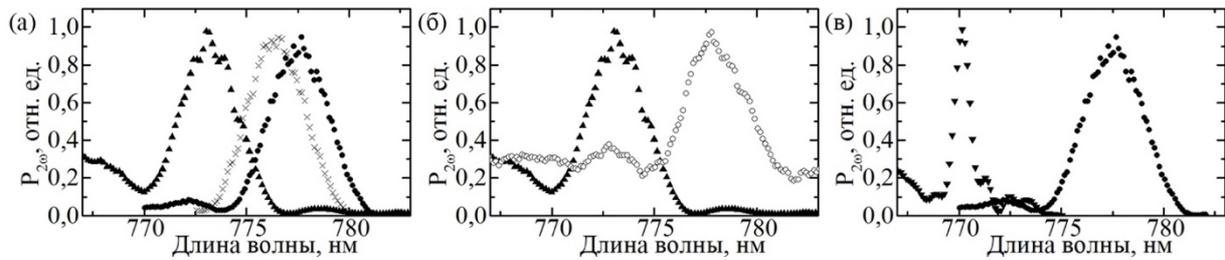


Рисунок 19 – Спектры ГВГ: (а) в зависимости от ширины волновода при одинаковом периоде РДС, (б) в зависимости от периода РДС при одинаковой ширине волновода, (в) в зависимости от длины РДС. Параметры волноводов и спектров в таблице 3

Следует отметить, что полученная нормированная эффективность  $\eta = 48 \text{ \%}/(\text{Вт}\times\text{см}^2)$  сопоставима с результатами, полученными в поверхностных волноводах с РДС, изготовленными классическим способом.

Таблица 3 – Основные параметры волноводов и полученных спектров ГВГ

	○	▲	×	●	▼
$L$ , мм	1,5	1,5	1,5	1,5	6,0
$\Lambda$ , мкм	16,4	16,2	16,2	16,2	16,0
$W$ , мкм	5	5	7	8	5
$\lambda$ , нм	778,0	773,2	776,4	777,6	770,2
$\sigma$ , нм	4,3	3,3	3,3	3,4	0,9
$\eta$ , $\%/( \text{Вт}\times\text{см}^2)$	1	8	28	48	36

Полученное симметричное распределение энергии фундаментальной и вторичной волн свидетельствует о распространении по волноводу основных мод фундаментальной и вторичной волн (Рисунок 20а,б). Энергия вторичной волны квадратично зависит от энергии фундаментальной (Рисунок 20в).

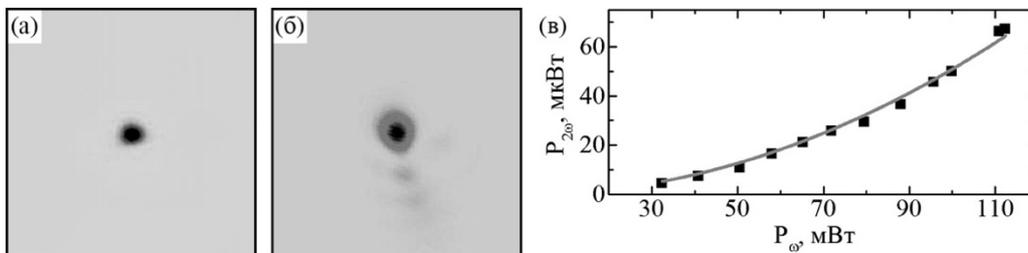


Рисунок 20 – Пространственное распределение энергии (а) фундаментальной и (б) вторичной волн. (в) Зависимость энергии вторичной волны  $P_{2\omega}$  от энергии фундаментальной  $P_{\omega}$ .

Полученные зависимости спектров ГВГ от параметров РДС и формы распределения энергии, а также квадратичная зависимость энергии вторичной волны от энергии фундаментальной волны полностью соответствуют заложенным при создании величинам. Пространственное распределение показателя преломления в градиентном волноводе не всегда воспроизводится, что требует изменения периода РДС для удовлетворения условий фазового квазисинхронизма. Это практически невозможно при создании волновода в образце с РДС. При переключении электронным лучом отклонения величины показателя преломления от расчетного при создании градиентного волновода можно корректировать изменением периода РДС. Следовательно, разработанный способ изготовления РДС в образце с волноводами позволяет контролировать параметры НЛО процессов в большей степени, чем при создании канальных волноводов в образце с РДС.

## ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ РАБОТЫ

Проведенные систематические исследования особенностей кинетики ДС при переключении поляризации при приложении внешнего электрического поля и при помощи сфокусированного электронного луча в LN с приповерхностными волноводами, полученными различными вариантами метода протонного обмена, позволили сделать следующие основные выводы:

1. Впервые обнаружена деградация регулярной доменной структуры, за счет образования нанодоменов глубиной до 15 мкм в градиентных канальных волноводах после завершения протонного обмена. Показано, что уменьшение градиента в волноводе позволяет избежать деградации.
2. Впервые обнаружено гигантское уменьшение порогового поля зародышеобразования в градиентных волноводах, которое вызвано формированием в приповерхностном слое незаэкранированного деполяризирующего поля.
3. Обнаружено дискретное переключение поляризации в ниобате лития со ступенчатыми планарными волноводами, вызванное уменьшением эффективности внешнего экранирование деполяризирующих полей, а также формирование и рост доменных лучей при наличии градиента поляризации, вызванные неэффективным объемным экранированием.
4. Обнаружен эффект изотропного роста доменов при облучении сфокусированным электронным лучом ниобата лития с градиентным планарным волноводом, обусловленный слиянием растущего домена с изолированными нанодоменами.
5. Продемонстрирована возможность создания регулярной доменной структуры сфокусированным электронным лучом в ниобате лития с канальными градиентными волноводами, и получена генерация второй гармоники лазерного излучения с длиной волны в полосе пропускания для телекоммуникационных систем.

## ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Shur V.Ya. Micro- and nano-domain engineering in lithium niobate / V.Ya. Shur, A.R. Akhmatkhanov, I.S. Baturin // *Appl. Phys. Rev.* – 2015. – Vol. 2. – № 4. – P. 040604.
2. Shur V.Ya. Nano- and micro-domain engineering in normal and relaxor ferroelectrics / V.Ya. Shur // *Handbook of Advanced Dielectric, Piezoelectric and Ferroelectric Materials* / ed. Z.-G. Ye. – Elsevier, 2008. – P. 622-669.
3. Domain patterning by electron beam of MgO doped lithium niobate covered by resist / V.Ya. Shur [et al.] // *Appl. Phys. Lett.* – 2015. – Vol. 106. – № 23. – P. 232902.
4. De Micheli M.P. Fabrication and characterization of proton exchanged waveguides in periodically poled congruent lithium niobate / M.P. De Micheli // *Ferroelectrics.* – 2006. – Vol. 340. – № 1. – P. 49-62.
5. Reverse proton exchange for buried waveguides in LiNbO<sub>3</sub> / Yu.N. Korkishko [et al.] // *J. Opt. Soc. Am. A.* – 1998. – Vol. 15. – № 7. – P. 1838.
6. Soft proton exchange on periodically poled LiNbO<sub>3</sub>: A simple waveguide fabrication process for highly efficient nonlinear interactions / L. Chanvillard [et al.] // *Appl. Phys. Lett.* – 2000. – Vol. 76. – № 9. – P. 1089.
7. Highly confining proton exchanged waveguides on Z-Cut LiNbO<sub>3</sub> with preserved nonlinear coefficient / O. Stepanenko [et al.] // *IEEE Photon. Technol. Lett.* – 2014. – Vol. 26. – № 15. – P. 1557-1560.
8. Subsurface disorder and electro-optical properties of proton-exchanged LiNbO<sub>3</sub> / S.M. Kostitskii [et al.] // *J. Eur. Opt. Soc, Rapid Publ* – 2014. – Vol. 9. – P. 14055.

9. Lithium-niobate Mach-Zehnder interferometer with enhanced index contrast by SiO<sub>2</sub> film / Kai Xin Chen [et al.] // IEEE Photon. Technol. Lett. – 2015. – Vol. 27. – № 11. – P. 1224.
10. Soergel E. Visualization of ferroelectric domains in bulk single crystals / E. Soergel // Appl. Phys. B. – 2005. – Vol. 81. – № 6. – P. 729-751.
11. Raman visualization of micro- and nanoscale domain structures in lithium niobate / P.S. Zelenovskiy [et al.] // Appl. Phys. A. – 2010. – Vol. 99. – № 4. – P. 741-744.
12. Suhara T. Waveguide Nonlinear-Optic Devices / T. Suhara, M. Fujimura. – Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2003.
13. White J.M. Optical waveguide refractive index profiles determined from measurement of mode indices: a simple analysis / J.M. White, P.F. Heidrich // Appl. Opt. – 1976. – Vol. 15. – № 1. – P. 151.
14. Иевлев А.В. Формирование микро- и нанодоменных структур в сегнетоэлектрических материалах методами сканирующей зондовой микроскопии : дис. к.ф.-м.н.: 01.04.07 / А.В. Иевлев. – Екатеринбург: УрФУ, 2012. – 146 с.
15. Долбилов М.А. Исследование формирования микро- и нанодоменных структур в монокристаллах ниобата лития с поверхностным слоем, модифицированным методом протонного обмена : дис. к.ф.-м.н.: 01.04.07 / М.А. Долбилов. – Екатеринбург: УрГУ, 2011. – 160 с.

### СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

*Статьи в рецензируемых научных журналах, определенных ВАК:*

1. 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, A.V. Ievlev, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin and **M.M. Neradovskiy** // J. Appl. Phys. – 2011. – Vol. 110. – № 5. – P. 52017.
2. Domain switching by electron beam irradiation of Z<sup>+</sup>-polar surface in Mg-doped lithium niobate / V.Ya. Shur, D.S. Chezganov, M.M. Smirnov, D.O. Alikin, **M.M. Neradovskiy** and D.K. Kuznetsov // Appl. Phys. Lett. – 2014. – Vol. 105. – № 5. – P. 052908.
3. Fabrication of SPE waveguides on PPLN: formation of nanodomains and their impact on the SHG efficiency / **M.M. Neradovskiy**, V.Ya. Shur, N.A. Naumova, D.O. Alikin, A.I. Lobov, H. Tronche, P. Baldi, M.P. De Micheli // Ferroelectrics. – 2015. – Vol. 476. – № 1. – P. 127.
4. Formation of broad domain boundary in congruent lithium niobate modified by proton exchange / V.Ya. Shur, **M.M. Neradovskiy**, M.A. Dolbilov, A.I. Lobov, P.S. Zelenovskiy, A.D. Ushakov, E.S. Ushakova, E. Quillier, P. Baldi, M.P. De Micheli // Ferroelectrics. – 2015. – Vol. 476. – № 1. – P. 146.
5. Investigation of Domain Kinetics in Congruent Lithium Niobate Modified by Proton Exchange / **M.M. Neradovskiy**, V.Ya. Shur, E.A. Mingaliev, P.S. Zelenovskiy, E.S. Ushakova, H. Tronche, P. Baldi, M.P. De Micheli // Ferroelectrics. – 2016. – Vol. 496. – № 1. – P. 113

*Другие публикации:*

6. Influence of adsorbed surface layers on polarization reversal by tip of scanning probe microscope / A.V. Ievlev, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, **M.M. Neradovsky**, V.Ya. Shur // Abstracts of the ISFD'10. – Prague, Czech Republic, September 20-24, 2010, – P. 53.
7. Влияние проводимости адсорбированных поверхностных слоев на рост одиночного домена в электрическом поле, созданном зондом сканирующего зондового микроскопа / В.Я. Шур, А.В. Иевлев, Е.В. Николаева, Е.И. Шишкин, **М.М. Нерадовский** // Тезисы ВКС-XIX. – Москва, 20-23 июня 2011. – С. 79.
8. Influence of adsorbed surface layer conductivity on single domain growth in electric field produced by tip of SPM / A.V. Ievlev, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, **M.M. Neradovsky**, V.Ya. Shur // Abstracts of EMF 2011. – Bordeaux, France, June 26 - July 2, 2011. – 2B-40

9. Interaction between neighboring isolated domains in 2D array produced by scanning probe microscope in lithium niobate / **M.M. Neradovskiy**, A.V. Ievlev, V.Ya. Shur, A.I. Lobov, S.V. Kalinin // Abstracts of ISAF-PFM-2012. – Aveiro, Portugal, July 9-13, 2012. – P. 187.
10. Interaction between neighboring isolated domains in 2D Array produced by scanning probe microscope in lithium niobate / **M.M. Neradovskiy**, A.V. Ievlev, V.Ya. Shur, A.I. Lobov, S.V. Kalinin // Abstracts of ISFD-11-RCBJSF. – Ekaterinburg, August 20-24, 2012. – P. 203.
11. Formation of ordered and disordered nanodomain chains as a result of switching by conductive tip of SPM / A. Ievlev, V. Shur, **M. Neradovskiy**, A. Morozovska, E. Eliseev, S. Kalinin // Abstracts of UFFC-PFM2013. – Prague, Czech Republic, July 21-25, 2013. – P. C3-3.
12. Local polarization reversal in the vicinity of 180° domain wall in lithium niobate / A. Ievlev, V. Shur, **M. Neradovskiy**, A. Turigin, A. Morozovska, E. Eliseev, S. Kalinin // Abstracts of UFFC-EFTF-PFM 2013. – Prague, Czech Republic, July 21-25, 2013. – P. PA-16.
13. Interaction between isolated nanodomains in the domain chains produced by conductive tip of SPM / A.V. Ievlev, V.Ya. Shur, **M.M. Neradovskiy**, A.N. Morozovska, E.A. Eliseev, S.V. Kalinin // Abstracts of IMF-13. – Krakow, Poland, September 2-6, 2013. – PP. 285-286.
14. Формирование доменной структуры в монокристаллах ниобата лития в результате воздействия сфокусированного электронного луча / М.М. Смирнов, Д.С. Чезганов, Д.О. Аликин, **М.М. Нерадовский**, П.С. Зеленовский, Д.К. Кузнецов, В.Я. Шур // Тезисы СПФКС-14. – Екатеринбург, 20-26 ноября 2013. – С. 229.
15. Domain switching by e-beam irradiation of  $Z^+$  polar surface in Mg-doped lithium niobate / D.S. Chezganov, M.M. Smirnov, D.O. Alikin, **M.M. Neradovskiy**, D.V. Zorikhin, D.K. Kuznetsov, V.Ya. Shur // Abstracts ECAPD14. – Vilnius, Lithuania, July 7-11, 2014. – P. 161.
16. Periodical domain structure in congruent lithium niobate with channel waveguides produced by proton exchange / M.P. De Micheli, V.Ya. Shur, **M. Neradovskiy**, N. Naumova, D. Alikin, E. Quillier, P. Baldi // Abstracts of PFM2014. – Ekaterinburg, July 14-17, 2014. – P. 72.
17. Formation of broad domain boundary in congruent LN modified by proton exchange / **M.M. Neradovskiy**, V.Ya. Shur, M.A. Dolbilov, P.S. Zelenovskiy, E.S. Ushakova, E. Quillier, P. Baldi, M.P. De Micheli // Abstracts of PFM2014. – Ekaterinburg, July 14-17, 2014. – P. 73.
18. Domain patterning by direct electron beam irradiation of lithium niobate single crystals / D. Chezganov, V.Ya. Shur, M. Smirnov, D. Alikin, **M. Neradovskiy**, D. Zorikhin, D. Kuznetsov // Abstracts of PFM-2014. – Ekaterinburg, July 14-17, 2014. – P. 135.
19. Формирование доменной структуры в MgOLN при облучении  $Z^+$  полярной поверхности электронным лучом / Д.С. Чезганов, М.М. Смирнов, Д.О. Аликин, **М.М. Нерадовский**, Д.К. Кузнецов, В.Я. Шур // Тезисы ВКС-XX. – Красноярск, 18-22 августа 2014. – С. 332.
20. Эволюция нанодоменных структур, образующихся перед движущейся доменной стенкой в ниобате лития, модифицированном протонным обменом / В.Я. Шур, М.А. Долбилов, Е.В. Шишкина, Д.О. Аликин, Е.С. Ангулович, А.Д. Ушаков, **М.М. Нерадовский**, P. Baldi, M.P. De Micheli // Тезисы ВКС-XX. – Красноярск, 18-22 августа 2014. – С. 326.
21. Study of domain switching by electron beam irradiation of  $Z^+$  polar surface in lithium niobate single crystals / D.S. Chezganov, M.M. Smirnov, D.O. Alikin, **M.M. Neradovskiy**, D.K. Kuznetsov, V.Ya. Shur // Abstracts of ISFD-12. – Nanjing, China, Nov 2-5, 2014. – P. 85.
22. Формирование доменной структуры облучением электронным лучом  $Z^+$  полярной поверхности MgO:LN / Д.С. Чезганов, М.М. Смирнов, Д.О. Аликин, **М.М. Нерадовский**, Д.К. Кузнецов, В.Я. Шур // Тезисы РЭМ2015. – Черногоровка, Россия, 1-5 июня 2015. – С. 406.
23. Formation of nanodomains during the fabrication of SPE waveguides in periodically poled LiNbO<sub>3</sub> crystals / **M.M. Neradovskiy**, N.A. Naumova, D.O. Alikin, V.Ya. Shur, H. Tronche, P. Baldi, M.P. De Micheli // Abstracts of PTISO15. – Kazan, June 22-25, 2015. – P. 20.

24. Study of domain structure formation by beam of charged particles in MgO doped lithium niobate / D.S. Chezganov, M.M. Smirnov, M.A. Chuvakova, **M.M. Neradovskiy**, D.O. Alikin, D.K. Kuznetsov, V.Ya. Shur // Abstracts of PTISO15. – Kazan, June 22-25, 2015. – P. 51.
25. Formation of broad domain boundary in congruent lithium niobate modified by proton exchange / **M.M. Neradovskiy**, V.Ya. Shur, M.A. Dolbilov, A.I. Lobov, P.S. Zelenovskiy, A.D. Ushakov, E.S. Ushakova, H. Tronche, P. Baldi, M.P. De Micheli // Abstracts of PTISO15. – Kazan, June 22-25, 2015. – P. 65.
26. Study of domain switching by electron beam irradiation in MgO doped lithium niobate crystals / D.S. Chezganov, A.R. Akhmatkhanov, M.M. Smirnov, M.A. Chuvakova, **M.M. Neradovskiy**, D.O. Alikin, D.K. Kuznetsov, V.Ya. Shur // Abstracts of EMF-13. – Porto, Portugal, June 28 -July 3, 2015. – P3\_13.
27. Investigation of domain formation by electron beam irradiation in MgO doped lithium niobate / D. Chezganov, D. Alikin, D. Kuznetsov, M. Smirnov, **M. Neradovskiy**, M. Chuvakova, V. Shur // Abstracts of MCM-12. – Eger, Hungary, August 23-28, 2015. – P.447-449.
28. Nanodomains appeared after creation of proton exchange waveguides in periodically poled LiNbO<sub>3</sub> crystals / **M.M. Neradovskiy**, V.Ya. Shur, D.O. Alikin, N.A. Naumova, L.V. Gimadeeva, H. Tronche, P. Baldi, M.P. De Micheli // Abstracts of IWMN 2015. – Ekaterinburg, August 27-29, 2015. – P. 26.
29. Investigation of Domain Kinetics in Congruent Lithium Niobate Modified by Proton Exchange / **M.M. Neradovskiy**, V.Ya. Shur, E.A. Mingaliev, P.S. Zelenovskiy, E.S. Ushakova, L.V. Gimadeeva, H. Tronche, P. Baldi, M.P. De Micheli // Abstracts of IWMN 2015. – Ekaterinburg, August 27-29, 2015. – P. 55.
30. Domain switching by beam of charged particles in MgO-doped lithium niobate single crystals / D.S. Chezganov, A.R. Udalov, A.R. Akhmatkhanov, M.M. Smirnov, M.A. Chuvakova, **M.M. Neradovskiy**, D.O. Alikin, D.K. Kuznetsov, V.Ya. Shur // Abstracts of ISFP 8. – Voronezh, September 14-16, 2015. – P. 65.
31. Изучение формирования нанодоменов в периодически поляризованных кристаллах LiNbO<sub>3</sub> после создания канальных волноводов методом протонного обмена / Л.В. Гимадеева, **М.М. Нерадовский**, В.Я. Шур, Д.О. Аликин, Н.А. Наумова, H. Tronche, P. Baldi, M.De Micheli // Тезисы СПФКС-16. – Екатеринбург, 12-19 ноября, 2015. – С. 163.
32. Исследование формирования доменной структуры в монокристаллах конгруэнтного ниобата лития, легированного MgO, под действием сфокусированного ионного пучка / Е.О. Власов, Д.С. Чезганов, А.Р. Ахматханов, **М.М. Нерадовский**, М.А. Чувакова, Д.О. Аликин, В.Я. Шур // Тезисы СПФКС-16. – Екатеринбург, 12-19 ноября, 2015. – С. 198.
33. Формирование доменной структуры электронным пучком в монокристаллах ниобата лития, легированных MgO / Д.С. Чезганов, Е.О. Власов, А.Р. Ахматханов, М.М. Смирнов, М.А. Чувакова, **М.М. Нерадовский**, Д.О. Аликин, Д.К. Кузнецов, В.Я. Шур // Тезисы СПФКС-16. – Екатеринбург, Россия, 12-19 ноября, 2015. – С. 199.
34. Nanodomains formation in PPLN during waveguide fabrication using the soft proton exchange process / **M. Neradovskiy**, D. Alikin, D. Kuznetsov, L. Gimadeeva, V.Ya. Shur, H. Tronche, F. Doutre, T. Lunghi, P. Baldi, M.P. De Micheli // Abstract book IS-OM7. – Lyon, France, 29 February – 4 March, 2016. – P. O-25.
35. Highly efficient nonlinear waveguides in LiNbO<sub>3</sub> fabricated by a combination of Soft Proton Exchange (SPE) and E-beam writing / **M. Neradovskiy**, D. Chezganov, L. Gimadeeva, E. Vlasov, V. Kvashnin, E. Kolchina, A. Akhmatkhanov, M. Chuvakova, D. Alikin, H. Tronche, F. Doutre, P. Baldi, V. Ya. Shur, M. P. De Micheli // Abstract book ECIO2016. – Warsaw, Poland, 18-21 May, 2016. – P. 123

