

# Периодические доменные структуры, сформированные электронным лучом в пластинах $\text{LiNbO}_3$ и планарных волноводах $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ $Y$ -ориентации

© Л.С. Коханчик<sup>1</sup>, М.В. Бородин<sup>2</sup>, С.М. Шандаров<sup>2</sup>, Н.И. Буримов<sup>2</sup>, В.В. Щербина<sup>2</sup>, Т.Р. Волк<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН, Черноголовка, Московская обл., Россия

<sup>2</sup> Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Томск, Россия

<sup>3</sup> Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН, Москва, Россия

E-mail: shand@ed.tusur.ru

(Поступила в Редакцию 8 декабря 2009 г.)

Приведены результаты формирования электронным лучом регулярных доменных структур на  $Y$ -срезах в подложках  $\text{LiNbO}_3$  и в волноводных структурах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  на их основе. Обнаружены различия процессов формирования доменов в чистом и легированном титаном  $\text{LiNbO}_3$ ; методами химического травления и волноводной генерации второй гармоники показано, что в волноводах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  регулярные доменные структуры формируются на глубине около  $8\ \mu\text{m}$  от поверхности, где концентрация  $\text{Ti}$  не превышает значений 2 mol.%. На сформированных структурах получена квазисинхронная волноводная генерация второй оптической гармоники с эффективностью 8.8%.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 08-02-99023-р\_офи, 09-02-00609а и 09-02-00969а) и программы „Развитие научного потенциала высшей школы (2009–2010 гг.)“.

## 1. Введение

Сегнетоэлектрические регулярные доменные структуры (именуемые в литературе периодически поляризованными структурами — ППС) представляют значительный интерес для реализации эффектов квазисинхронного нелинейно-оптического взаимодействия [1,2] и устройств управления параметрами лазерного излучения [3]. Одноосные сегнетоэлектрические кристаллы ниобата лития и оптические волноводы на их основе, в которых могут быть сформированы высококачественные ППС [1–9], привлекательны для решения таких задач благодаря высоким значениям коэффициента нелинейной оптической восприимчивости второго порядка  $d_{33}$  и линейного электрооптического коэффициента  $r_{33}$  [3,4].

Нелинейные оптические взаимодействия в оптических волноводах на ППС имеют большую эффективность, чем в случае их реализации в объемных образцах  $\text{LiNbO}_3$ , благодаря более высокой интенсивности световых волн. Волноводная геометрия нелинейных и управляющих элементов является предпочтительной, в частности для оптических схем с полупроводниковыми инжекционными лазерами и волоконно-оптическими системами.

Для создания периодически поляризованных волноводных структур в ниобате лития (НЛ) используются два подхода, различающиеся порядком формирования волноводного слоя и ППС. В одном случае волноводная структура создается на ППС, предварительно сформированной в подложке, причем во избежание частичной термической деполяризации ППС изготовление вол-

новода проводится сравнительно низкотемпературными методами, такими как протонный обмен [5,7], диффузия  $\text{Zn}$  из паровой фазы [10] или металлической пленки [11] и ионная имплантация [12]. В другом случае ППС создается в уже готовых волноводных структурах. Например, в оптических волноводах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ , сформированных на полярной ( $-Z$ ) поверхности подложки высокотемпературной диффузией  $\text{Ti}$  ( $\sim 1050^\circ\text{C}$ ), создание ППС осуществлялось переполаризацией во внешнем периодическом электрическом поле [13] и методом электронно-лучевой записи [8]. Однако в оптических схемах и устройствах с полупроводниковыми лазерными диодами предпочтительным является использование волноводных структур, сформированных на неполярных ( $X$  или  $Y$ ) срезах ниобата лития. Невозможность создания планарных ППС в таком волноводе путем переполаризации во внешнем поле требует поисков других методов их получения.

В настоящей работе представлены первые результаты по созданию планарных ППС на  $Y$ -срезах в подложках  $\text{LiNbO}_3$  и в волноводных структурах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  на их основе путем локальных дискретных облучений поверхности электронным пучком, нормальным полярной оси  $Z$ . Сформированные электронным пучком планарные ППС исследовались методом химического травления и оптическими методами, включающими волноводную квазисинхронную генерацию второй гармоники (ГВГ), а также их визуализацию методами микроскопии ГВГ и рассеяния волноводного пучка на основной частоте и на второй гармонике в излучательные моды.

## 2. Методика формирования оптических волноводов и доменных структур

Для формирования ППС в нелегированном LiNbO<sub>3</sub> и в планарных волноводах Ti:LiNbO<sub>3</sub> использовались идентичные оптически полированные пластины Y-среза из конгруэнтного ниобата лития  $X \times Y \times Z = 20 \times 1.5 \times 10$  mm. На две из них вакуумным термическим напылением были нанесены пленки Ti толщиной  $\sim 120$  nm. Далее в этих подложках формировались планарные оптические волноводы методом высокотемпературной диффузии [14,15], которая проводилась в воздушной атмосфере при температуре 1050°C в течение 20 h. Проведенные измерения показали, что сформированные в результате волноводы имели близкие оптические параметры.

Для ввода и вывода излучения и измерения спектра эффективных показателей преломления  $n_p^*$  волноводных TE-мод на длинах волн  $\lambda = 526.5, 532.0, 632.8, 1053$  и  $1064$  nm использовались призмы связи из рутила и ниобата лития. Сформированные волноводы поддерживали распространение двух мод TE-поляризации в ИК-диапазоне и пяти TE-мод в зеленой области спектра. Профиль показателя преломления волноводов на длине волны 526.5 nm хорошо аппроксимировался функцией

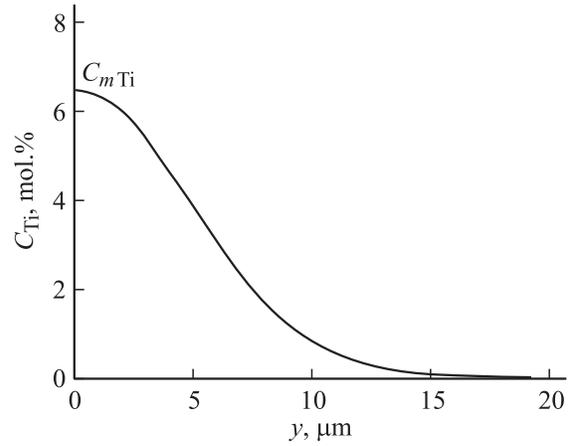
$$N_e(y) = N_{esg} + \frac{\Delta N_{eg}}{\cosh^2(y/h)} \quad (1)$$

с параметрами  $\Delta N_{eg} = 0.0218$ ,  $h = 6.17 \mu\text{m}$  и  $N_{esg} = 2.2351$ . Описание оптических и нелинейно-оптических характеристик с использованием такого профиля удобно тем, что распределение поля  $E_{z,p}(y)$  волноводной TE-моды с номером  $p$  может быть получено для него в аналитическом виде [16,17]. Использование той же самой аппроксимирующей функции позволило из экспериментальных данных для  $n_p^*$  определить значения максимального приращения показателя преломления как  $\Delta N_{er} = 0.020$  для  $\lambda = 632.8$  nm и  $\Delta N_{eir} = 0.0179$  ( $\lambda = 1053$  nm).

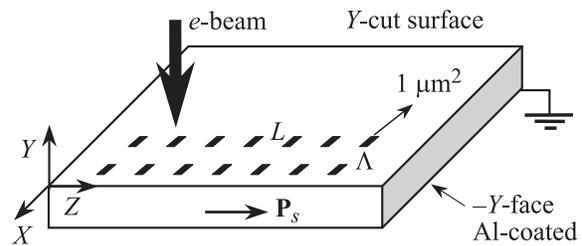
Приращение необыкновенного показателя преломления в волноводах на НЛ линейно связано с концентрацией Ti, причём для света с длиной волны 632.8 nm  $dN_e/dC_{Ti} = 1.6 \cdot 10^{-29} \text{ m}^3$  [14]. Для наблюдаемых значений  $\Delta N_{er}$  оценка даёт  $C_{Ti} = (0.02/1.6 \cdot 10^{-23}) \text{ cm}^{-3} \approx 1.25 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^{-3} \approx 6 \text{ mol.}\%$ . При времени диффузии, значительно превосходящем время, необходимое для полного вхождения примеси из пленки в кристалл, профиль ее концентрации описывается функцией Гаусса [14]

$$C_{Ti}(y) = \frac{2\tau}{\sqrt{\pi}b} \alpha \exp\left(-\frac{y^2}{b^2}\right), \quad (2)$$

где  $\alpha$  — число атомов в единице объема нанесенной на кристалл пленки, имеющей толщину  $\tau$ , а параметр  $b$  характеризует глубину диффузии. Профили приращения показателя преломления, описываемые соотношением (1) и функцией Гаусса, близки друг к другу.



**Рис. 1.** Распределение концентрации титана в поверхностном слое исследованной структуры Ti:LiNbO<sub>3</sub>, рассчитанное на основе подхода и данных [14] из измеренных значений эффективных показателей преломления волноводных TE-мод на длине волны 633 nm.



**Рис. 2.** Схема рисования электронным лучом по поверхности Y-среза LiNbO<sub>3</sub> и Ti:LiNbO<sub>3</sub> в РЭМ.

Это позволяет из экспериментальных данных оценить параметры распределения концентрации титана в волноводном слое, которое представлено на рис. 1, как  $C_{mTi} = (2/\sqrt{\pi})(\tau/b)\alpha = 6.4 \text{ mol.}\%$  и  $b = 7.2 \mu\text{m}$ . Величина  $C_{Ti}$  согласуется с приведенной выше ее оценкой.

Для реализации квазисинхронного преобразования во вторую гармонику (ВГ) пространственный период ППС определяется соотношением [18]

$$\Lambda = \frac{m\lambda}{2(n_{2\omega} - n_{\omega})}, \quad (3)$$

где  $\lambda$  — длина волны фундаментального излучения,  $n_{\omega}$  и  $n_{2\omega}$  — показатели преломления фундаментальной и преобразованной волн соответственно,  $m = 1, 3, 5, \dots$ . Из экспериментальных значений  $n_p^*$  было получено, что при накачке с  $\lambda = 1053$  nm для преобразования первого порядка во ВГ в сформированных волноводах необходимы доменные структуры с пространственным периодом от 5.6 до 7.5  $\mu\text{m}$ .

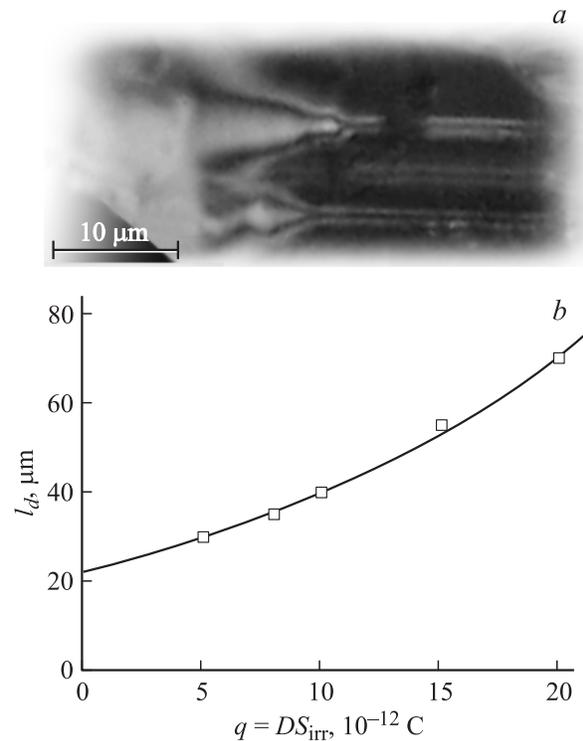
Формирование планарных периодических доменных решеток проводилось в растровом электронном микроскопе (РЭМ) JSM-840A с дополнительно встроенной программой NanoMaker, позволяющей управлять электронным лучом при рисовании по поверхности и кон-

тролировать дозы облучения. Схема рисования в РЭМ представлена на рис. 2. Описанная далее методика формирования планарных доменных решеток электронным лучом применялась ранее при записи ППС на  $Y$ -срезах  $\text{LiTaO}_3$  [19]. Структуры создавались путем последовательного локального облучения  $Y$ -поверхности образца при дискретном перемещении луча вдоль кристаллографических осей  $Z$  или  $X$ ; противоположная, не облучаемая электронами сторона кристаллов покрывалась слоем  $\text{Al}$  и заземлялась. Площадь локального облучения устанавливалась  $S_{\text{irr}} = 1 \times 1 \mu\text{m}^2$ , время экспозиции для каждого такого облучения было порядка  $\text{ms}$ . Расстояние  $L$  между точками облучения при перемещении луча вдоль оси  $Z$  составляло  $15\text{--}20 \mu\text{m}$ . При перемещении луча вдоль оси  $X$  в соответствии с расчетами периода ППС расстояние между соседними точками облучения  $\Lambda = 7 \mu\text{m}$ . Доза облучения  $D = q/S_{\text{irr}}$  ( $q$  — заряд внедряемых электронов) варьировалась в диапазоне  $450\text{--}2500 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  при энергии пучка электронов  $E = 25 \text{keV}$  и токе  $I \sim 100 \text{pA}$ . Глубина проникновения электронов при этих дозах и параметрах пучка составляет примерно  $2 \mu\text{m}$ .

Полученные домены и доменные решетки выявлялись путем селективного химического травления образцов в кипящем растворе кислот  $\text{HF} + 2\text{HNO}_3$ . По нашим измерениям за время около  $30 \text{min}$  с поверхности легкого травления обычно удаляется слой в несколько микрометров. После травления полученные структуры исследовались в оптическом микроскопе Neophot 21 и в интерференционном оптическом микроскопе Zeiss Axioplan 2. Используемый метод записи электронным лучом позволил создать на  $Y$ -срезах в нелегированных кристаллах  $\text{LiNbO}_3$  и в планарных волноводах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  серию планарных ППС с поперечными размерами  $700 \times 700 \mu\text{m}$ .

### 3. Экспериментальные результаты

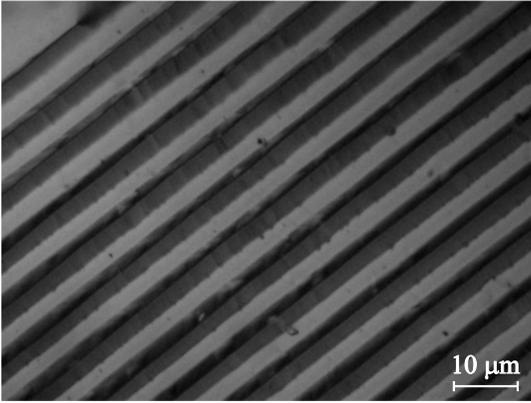
3.1. Планарные доменные решетки в  $\text{LiNbO}_3$ . При локальном облучении  $Y$ -среза образца НЛ формируется одиночный домен, растущий из зоны облучения вдоль полярной оси  $Z$  параллельно поверхности. Возникновение домена наблюдалось при определенной пороговой дозе, которая для используемой площади облучения  $S_{\text{irr}} = 1 \times 1 \mu\text{m}^2$  составляла  $450 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ . Прорастание домена из зоны облучения всегда происходило в направлении  $+Z$  (знак полярных поверхностей кристалла, т.е. направление спонтанной поляризации  $\mathbf{P}_s$ , определялся пьезоэлектрическим методом). В отличие от кристаллов танталата лития, где в подобных условиях формировались домены иглообразной формы с более широким концом в области облучения [19], в кристаллах НЛ росли домены с параллельными доменными стенками, и только на завершающей стадии роста наблюдался резко сужающийся конец треугольной формы (рис. 3, *a*). На рис. 3, *b* представлена точками экспериментальная



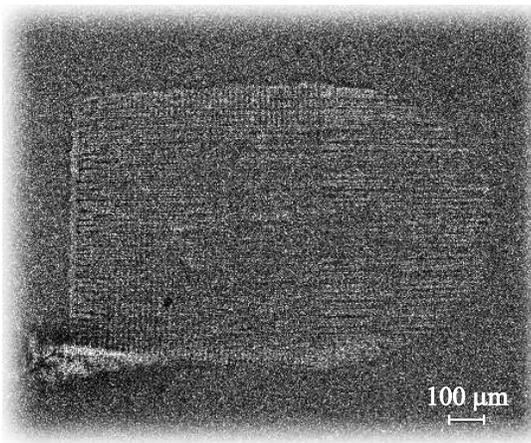
**Рис. 3.** Оптическое изображение индивидуального домена на  $Y$ -срезе ниобата лития после химического травления (*a*) и зависимость длины  $l_d$  индивидуальных доменов от величины внедряемого заряда (*b*).

зависимость длины растущих доменов  $l_d$  от величины внедряемого заряда, который рассчитывался по значениям доз облучения без учета количества вылетающих из образца отраженных и вторичных электронов. Зависимость аппроксимируется функцией  $l_d = l_0 \exp(q/q_0)$  с параметрами  $l_0 = 22.6 \mu\text{m}$  и  $q_0 = 17.5 \text{pC}$ , показанной на этом рисунке сплошной кривой. Боковое движение доменной границы (тангенциальное расширение индивидуальных доменов) практически не зависело от заряда. При облучении участка площадью в  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  домены почти сразу имели ширину несколько микрометров, которая с увеличением заряда не менялась. Ситуация отличается от записи в танталате лития, где ширина домена вдоль оси  $X$  существенно зависела от величины внедряемого заряда. Глубина доменов (т.е. линейные размеры вдоль оси  $Y$ ), которая оценивалась после травления в течение  $30 \text{min}$  по микрофотографиям с учетом ширины канавки домена легкого травления по оси  $X$  в предположении, что угол при вершине равен  $60^\circ$ , была порядка  $3.5\text{--}4 \mu\text{m}$ . Таким образом, глубина доменов была больше глубины проникновения электронов.

После серии локальных облучений в  $Z$ -направлении с расстоянием между точками  $L = 15\text{--}20 \mu\text{m}$  происходит „стыковка“ отдельных доменов, прорастающих из облученных областей, приводящая к возникновению квазилинейных протяженных доменов. В результате перемещения локальных облучений параллельно оси  $X$  на



**Рис. 4.** Изображение типичной совершенной части сформированной на  $Y$ -срезе кристалла  $\text{LiNbO}_3$  планарной доменной решетки с пространственным периодом  $\Lambda = 7 \mu\text{m}$ , полученное после селективного химического травления. Отношение поперечных размеров противоположно направленных доменов близко к единице.



**Рис. 5.** Потенциальное изображение планарной доменной решетки, сформированной на  $Y$ -срезе ниобата лития при облучении участка поверхности с размером  $700 \times 700 \mu\text{m}$  (доза  $D = q/S_{\text{ит}} = 800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ).

фиксированные расстояния  $\Lambda$  эти протяженные домены формируют ППС с заданным периодом. Измерения показали, что в начале процесса рисования решеток возникает достаточно нарушенная доменная структура с четкими стыковочными рядами между отдельными доменами. Постепенно с увеличением числа облученных участков доменная структура становится более совершенной. Типичный пример такой доменной решетки представлен на рис. 4.

Относительные размеры участка с совершенной доменной структурой увеличивались с дозой облучения, а также при увеличении плотности локальных зарядов, выстраиваемых в ряд по оси  $Z$ . Совершенство ППС существенно зависело также от направления перемещения электронного луча по оси  $Z$ . При перемещении луча

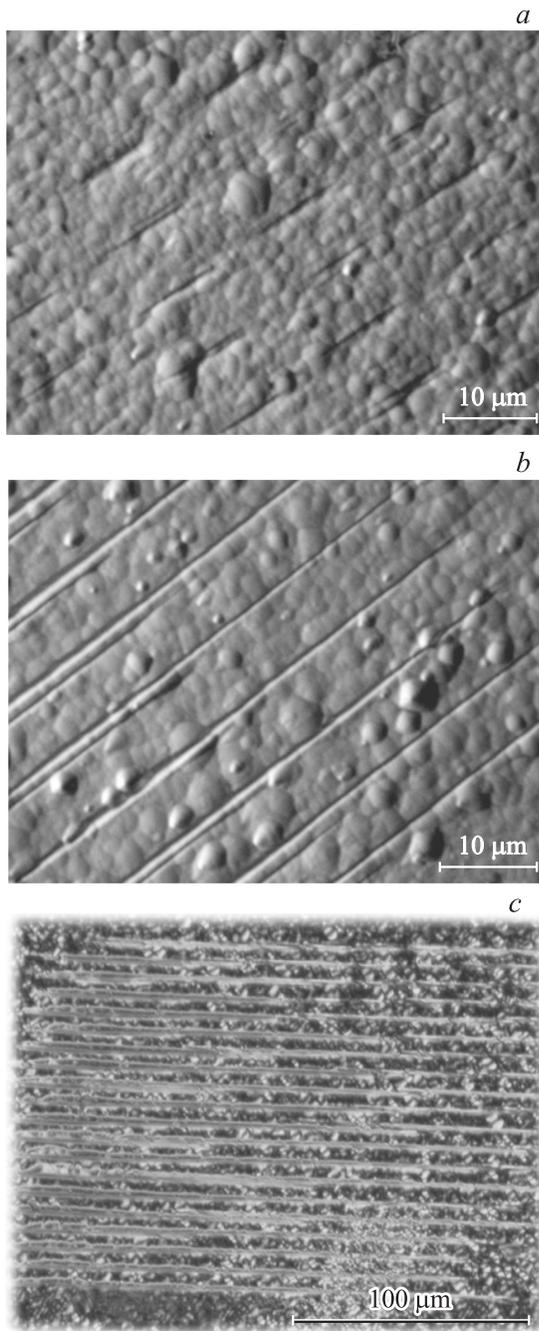
в направлении  $-Z$  относительная длина совершенной части структуры снижалась почти в 2 раза по сравнению с перемещением в направлении  $+Z$  (при идентичных параметрах облучения). Качественно это различие объясняется следующим образом. Как упоминалось выше, при локальном облучении индивидуальные домены растут из зоны облучения всегда в направлении  $+Z$ . Таким образом, при перемещении луча в направлении  $-Z$  фронтальное движение каждого записываемого домена затруднено существованием домена, образовавшегося при облучении предыдущей точки. Следует отметить, что на  $Y$ -срезах кристаллов танталата лития влияние предыдущих доменов приводило к значительно более резкому сокращению длины последующих [19].

Таким образом, наиболее совершенные планарные ППС были сформированы при перемещении луча в направлении  $+Z$ . Типичные латеральные размеры таких структур обычно больше размеров зоны облучения, что иллюстрируется рис. 5. Данное потенциальное изображение получено при ускоряющем напряжении в 2 kV еще до химического травления поверхности образца. Конечная часть планарной решетки состоит из доменов, образовавшихся после нанесения последнего ряда дискретных облучений, и имеет полуовальную форму. Домены, растущие из центральной зоны облучаемого квадрата, имели максимальную длину, увеличивающуюся с ростом дозы облучения.

Для оптических исследований ППС были изготовлены путем перемещения электронного луча в направлениях как  $+Z$ , так и  $-Z$  с использованием доз  $D = 800\text{--}1100 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ , оптимальных для формирования структур такого типа.

3.2. Доменные решетки в планарных волноводах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ . Идентичная схема облучения поверхности  $Y$ -среза кристаллов со сформированными волноводами  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  также привела к образованию планарных доменных решеток. Однако проведенная серия последовательных химических травлений одного из образцов выявила отличие доменов, возникших в волноводном слое, от структур, полученных в подложке и описанных в предыдущем разделе. В  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  домены были сформированы значительно глубже облучаемой поверхности кристалла, а их ширина значительно меньше, чем в нелегированном  $\text{LiNbO}_3$ . На рис. 6, *a* и *b* представлен типичный вид доменов на разной глубине от поверхности образца  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ . В результате травления в течение 30 min были обнаружены узкие домены с шириной, значительно меньшей  $1 \mu\text{m}$ , и длиной меньше  $10 \mu\text{m}$ , имеющие вид периодических пунктирных линий (рис. 6, *a*). Последующее химическое травление образцов в течение 30 min, позволившее выявить доменную структуру на глубине в  $7\text{--}8 \mu\text{m}$  от поверхности, т. е. в области низкой концентрации  $\text{Ti}$  (рис. 1), показало заметное и существенное увеличение длины доменов. Наиболее широкая часть домена, протравленная в виде канавки, могла быть размером  $1 \mu\text{m}$  и чуть шире; форма

доменов была постепенно сужающейся. Их длина в некоторых зонах доменной решетки значительно превышала  $L = 15 \mu\text{m}$  и составляла десятки микрон. Увеличение



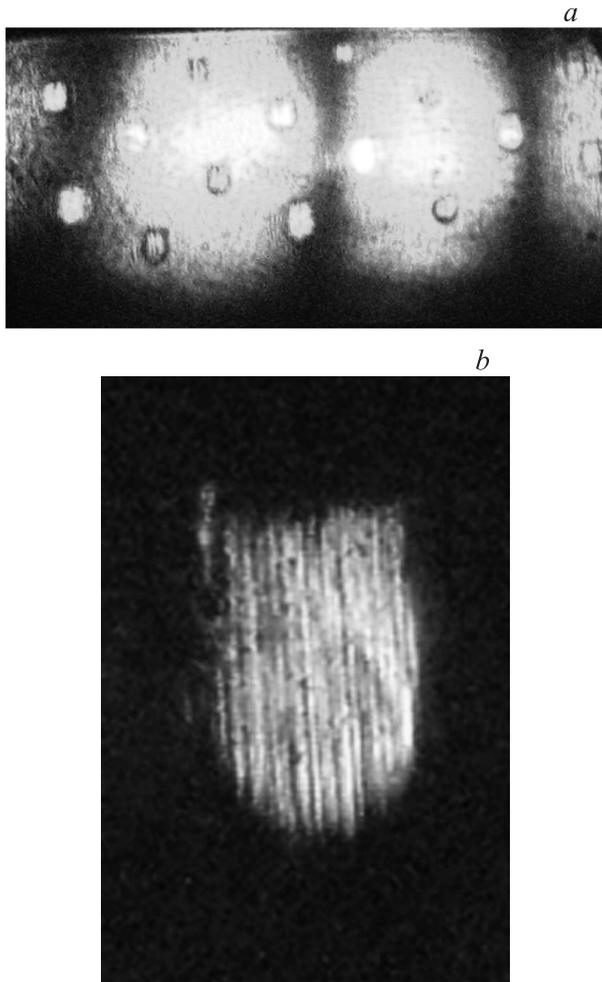
**Рис. 6.** Изображения сформированных в планарном волноводе  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$   $Y$ -ориентации доменных структур с пространственным периодом  $\Lambda = 7 \mu\text{m}$ , полученные после химического травления при дозах  $D = 1000$  (*a*, *b*) и  $2000 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  (*c*). *a* — после удаления слоя толщиной около  $3 \mu\text{m}$  видны отдельные узкие домены длиной  $\sim 8 \mu\text{m}$ ; *b* — после удаления поверхностного слоя толщиной  $\sim 8 \mu\text{m}$  для той же структуры домены остаются узкими, но сливаются; *c* — при дозе  $2000 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  формируется сравнительно совершенная периодическая доменная структура на глубине  $\sim 8 \mu\text{m}$  от поверхности волновода.

дозы облучения до  $2000 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  позволило получить планарные доменные структуры, состоящие из более широких доменов. Пример доменных структур такого типа, залегающих также на глубине в  $7\text{--}8 \mu\text{m}$  от поверхности облучения, после селективного травления представлен рядом на рис. 6, *c*.

Длина и совершенство доменных решеток в планарном волноводе  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ , так же как и в нелегированном  $\text{LiNbO}_3$ , существенно зависели от направления перемещения электронного луча вдоль оси  $Z$ . Для оптических исследований ППС в одном из волноводов были сформированы располагающиеся в два ряда вдоль оси  $X$  доменные решетки двух типов — при движении электронного луча в направлении  $+Z$  и при его обратном движении в направлении  $-Z$  — с дозами  $2000\text{--}2200 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ . Следует отметить, что такие дозы, оптимальные для формирования ППС в волноводах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ , в 2 раза превышали дозы облучения, необходимые для формирования планарных структур в подложке  $\text{LiNbO}_3$ .

**3.3. Оптическая характеристика планарных ППС.** Планарные ППС в нелегированных подложках  $\text{LiNbO}_3$  визуализировались методом микроскопии ГВГ [20] при засветке  $Y$ -поверхности образца пучком лазерного излучения ( $\lambda = 1053 \text{ nm}$ ) с длительностью импульсов  $10 \text{ ns}$ , энергией  $200 \mu\text{J}$  и вектором поляризации, ориентированным вдоль оптической оси  $Z$ . Изображение ППС наблюдалось на длине волны ВГ  $\lambda = 526.5 \text{ nm}$  с противоположной стороны образца с помощью микроскопической системы. Общее изображение сформированных 15 доменных решеток, полученное при засветке всей поверхности образца, представлено на рис. 7, *a* (фон обусловлен несинхронной ГВГ в объеме кристалла). Картина ГВГ на отдельной ППС, снятая с более высоким пространственным разрешением и показанная на рис. 7, *b*, отображает форму созданной электронным лучом планарной доменной решетки. Она аналогична наблюдаемой на потенциальном изображении, представленном на рис. 5.

Для оптической характеристики планарных ППС, созданных в оптических волноводах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ , использовалось возбуждение в них волноводных мод с помощью призм ввода и вывода из рутила. Совершенство доменных решеток, сформированных в планарном волноводе  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ , оценивалось при наблюдении распространения слабого волноводного пучка ( $\lambda = 632.8$  и  $532 \text{ nm}$ ) в направлении оси  $X$  вдоль отдельных рядов, составленных из таких структур. В одном из этих рядов, где доменные решетки были сформированы путем перемещения электронного луча в направлении  $-Z$ , происходило сильное рассеяние света в  $m$ -линии для возбуждаемых волноводных мод и в излучательные моды, обусловленное прерывистой структурой планарных ППС. Благодаря рассеянию в излучательные моды такие ППС хорошо визуализировались и могли наблюдаться с помощью оптического микроскопа. Напротив, в структурах, образованных при перемещении записывающего



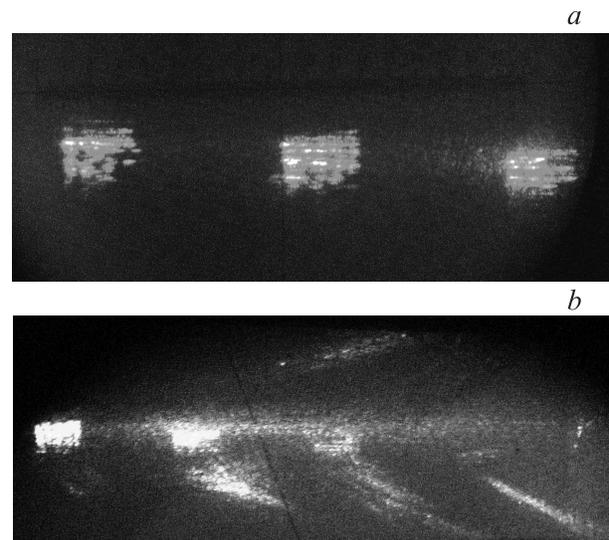
**Рис. 7.** Визуализация планарных, периодически поляризованных структур в нелегированной подложке  $\text{LiNbO}_3$   $Y$ -ориентации на частоте второй гармоники при засветке лазерным пучком ( $1053 \text{ nm}$ ) всей ее поверхности ( $a$ ) и одной доменной решетки ( $b$ ).  $a$  — светлые пятна малого размера соответствуют ГВГ на 15 сформированных доменных решетках; большого размера — несинхронной генерации в объеме подложки;  $b$  — ГВГ на одной из доменных решеток отображает полуовальную форму ее конечной части.

луча в оптимальном направлении  $+Z$ , эффекты рассеяния были значительно ослаблены.

В экспериментальных исследованиях волноводной ГВГ на планарных ППС в качестве накачки использовалось излучение импульсного лазера с  $\lambda = 1053 \text{ nm}$ , длительностью импульсов  $10 \text{ ns}$  и частотой повторения  $1 \text{ kHz}$ . ГВГ наблюдалась при возбуждении в волноводе пучка накачки как на моде  $\text{TE}_0$ , так и на моде  $\text{TE}_1$ . При этом с помощью призмы из волновода выводилось излучение  $\lambda = 526.5 \text{ nm}$  в виде  $m$ -линий на модах  $\text{TE}_0$ – $\text{TE}_4$ , имеющих различную интенсивность. При распространении пучка накачки через ряд „прерывистых“ ППС, созданных при движении электронного луча в направлении  $-Z$ , рассеяние в  $m$ -линии было

очень сильным. В этом случае сами структуры хорошо визуализировались с помощью оптического микроскопа на длине волны ВГ благодаря ее сильному рассеянию в излучательные моды (рис. 8,  $a$ ). Кроме того, при этом наблюдалась ГВГ в излучательные моды подложки по механизму Вавилова–Черенкова, при котором фазовая скорость волны нелинейной поляризации на частоте ВГ в волноводе превышает таковую для световых волн на той же частоте в подложке [21]. Типичная картина такой ГВГ, наблюдаемой с помощью оптического микроскопа на неполированной поверхности подложки, противоположной к волноводному слою, имела вид центрального „ствола“ и отходящих от него „ветвей“ (рис. 8,  $b$ ).

При распространении пучка накачки через ряд ППС, созданных при движении электронного луча в направлении  $+Z$ , в выводимых на второй гармонике  $m$ -линиях четко выделялась центральная часть, а рассеянное излучение было достаточно слабым. Высокая однородность таких ППС не позволяла наблюдать их в оптический микроскоп ввиду незначительного рассеяния второй гармоники в излучательные моды. По выводимому из выходной призмы излучению накачки и второй гармоники была оценена эффективность ГВГ для различных процессов взаимодействия. Максимальная эффективность была получена для процесса взаимодействия  $\text{TE}_1 + \text{TE}_1 \rightarrow \text{TE}_3$ , когда пучок накачки на моде  $\text{TE}_1$



**Рис. 8.** Полученные с помощью оптического микроскопа ГВГ-изображения планарных, периодически поляризованных структур при пучке накачки ( $1053 \text{ nm}$ ), распространяющемся на моде  $\text{TE}_1$  волновода  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  слева направо.  $a$  — наблюдается значительное рассеяние на неоднородностях трех последовательно расположенных ППС в излучательные моды на частоте второй гармоники;  $b$  — наблюдается ГВГ на неоднородностях последовательно расположенных ППС в излучательные моды подложки по механизму Вавилова–Черенкова („ветви“, отходящие от „стволов“). „Ствол“ соответствует рассеянию волноводного пучка второй гармоники на неоднородностях слоя  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  в излучательные моды.

распространялся по волноводу  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  через описываемый ряд высокооднородных ППС. При энергии импульсов накачки  $200 \mu\text{J}$  она составила 8.8%.

Проведенный на основе экспериментальных данных по эффективным показателям преломления волноводных мод расчет показал, что условия квазисинхронной ГВГ на ППС с пространственным периодом  $7 \mu\text{m}$  при накачке на длине волны  $1053 \text{ nm}$  наилучшим образом выполняются для процесса взаимодействия  $\text{TE}_0 + \text{TE}_0 \rightarrow \text{TE}_2$ . Далее, на эффективность волноводной ГВГ существенное влияние оказывает перекрытие распределений для наводимой модой накачки нелинейной поляризации и для светового поля генерируемой моды, соответствующей второй гармонике [21]. Как отмечалось в предыдущем разделе, в волноводах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  домены формируются на некоторой глубине от непосредственно облучаемой поверхности кристалла, которую можно оценить как  $7\text{--}8 \mu\text{m}$ . Для проверки этой оценки были проведены расчеты интегралов перекрытия для различных видов взаимодействия ( $\text{TE}_{0,1} + \text{TE}_{0,1} \rightarrow \text{TE}_{0-4}$ ), в которых принималось, что нелинейные свойства структур в направлении оси  $Y$  характеризуются прямоугольным профилем, а их толщина равна половине пространственного периода ППС ( $3.5 \mu\text{m}$ ). В этом приближении получено, что наблюдаемому экспериментально максимуму эффективности волноводной ГВГ для процесса  $\text{TE}_1 + \text{TE}_1 \rightarrow \text{TE}_3$  действительно соответствует локализация сформированных ППС на глубине  $\sim 8 \mu\text{m}$  от поверхности исследованного волновода  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ .

#### 4. Обсуждение результатов

Итогом настоящей работы явились первое получение регулярных доменных структур на  $Y$ -срезах  $\text{LiNbO}_3$  и в волноводах  $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$  при записи электронным лучом и характеристика созданных ППС оптическими и нелинейно-оптическими методами. Эти исследования выявили ряд особенностей образования доменов в таких нетривиальных условиях — под действием локализованного заряда, внедренного в неполярную поверхность. Обнаружено, что домены, возникшие при некоторой пороговой дозе, разрастаются преимущественно фронтально вдоль оси  $Z$ , а боковое движение доменных стенок вдоль оси  $X$  в используемом интервале доз не наблюдается. Напротив, в обычных условиях однородного поля переполаризация НЛ происходит по классическому механизму с участием бокового движения стенок [4].

Оценим величину полей, индуцирующих переполаризацию при облучении электронами. Протяженность доменов (десятки микрометров) на порядок ниже расстояния до противоположного электрода (сотни микрометров). Поэтому предполагается радиальное распределение силовых линий поля относительно распределения внедренного заряда и при обсуждении используется приближение поля точечного заряда [22]. Ниобат лития является диэлектриком с высокой концентрацией

дефектов разного типа, служащих в качестве центров захвата неравновесных носителей [4]. При энергии первичных электронов  $25 \text{ keV}$  относительное число эмиттированных электронов значительно ниже числа электронов, захваченных глубокими ловушками [23] на расстоянии нескольких микрометров от поверхности. Согласно [24], можно принять квантовый выход эмиссии электронов равным  $0.5\text{--}0.6$ . Таким образом, расчет, аналогичный [2], для пороговой дозы зарождения доменов  $D = 450 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  (при  $S_{\text{irr}} = 1 \times 1 \mu\text{m}^2$ ) дает величину поля  $E_d \approx 2 \cdot 10^8 \text{ V/m}$  на расстоянии  $1 \mu\text{m}$  от облученной области. Эта величина на порядок превышает пороговое поле переключения  $E_c = 2.2 \cdot 10^7 \text{ V/m}$ , наблюдаемое в конгруэнтном НЛ в пространственно однородном поле [4]. Величина поля на расстоянии нескольких десятков микрометров от облученной области составляет  $E_d \leq 10^5 \text{ V/m} \ll E_c$  для использованных доз облучения  $1000\text{--}2000 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ . Тем не менее длина доменов достигает десятков микрометров (рис. 3, *b*); иными словами, домены фронтально прорастают в полях  $E_d \ll E_c$ . Картина возникновения протяженных планарных доменов, подобная представленной в нашей работе, наблюдалась в НЛ при приложении потенциала порядка  $\text{kV}$  к острию иглообразного электрода с радиусом  $R \leq 1 \mu\text{m}$ , контактирующего также с неполярной  $Y$ -поверхностью [25–27].

Нами проведены оценки полей для этого случая в приближении поля точечного заряда, используемого авторами [28] для расчета полей под зондом высоковольтного атомно-силового микроскопа (АСМ). При напряжениях  $2.5\text{--}2.7 \text{ kV}$ , по оценкам соответствующих полю  $E_y \approx (20\text{--}25) \cdot 10^8 \text{ V/m}$  непосредственно под острием иглы, длина доменов достигает  $55 \mu\text{m}$  [27], хотя уже на расстоянии  $\sim 5 \mu\text{m}$  от точки контакта величина поля  $E_y \approx (0.6\text{--}0.8) \cdot 10^7 \text{ V/m} < E_c$ . Несмотря на приблизительность этих оценок, очевидно, что и при переполаризации под иглой фронтальное прорастание доменов происходит в полях  $E \ll E_c$ . Сходство между переключением под электронным лучом и иглой заключается также в несомненном вкладе пространственного заряда в наблюдаемые процессы: в первом случае — заряда захваченных электронов, во втором случае — заряда, инжектированного из иглы и обнаруженного независимыми методами [26,27]. Для качественного объяснения наблюдаемых особенностей можно привлечь модель переключения НЛ в высоковольтном АСМ [29,30], при котором также наблюдается фронтальное прорастание доменов в полях  $E \ll E_c$ . В этой модели предполагается, что в отличие от однородного поля, где динамика доменов контролируется нуклеацией (наиболее медленной стадией переключения), в условиях сильных локальных полей АСМ энергия нуклеации доменов  $\delta$  пренебрежимо мала. Определяющим фактором скорости переключения теперь является скорость движения доменных стенок  $V_{DW}$ , причем фронтальное движение стенок более энергетически выгодно, чем боковое. Если предположить, что наличие значитель-

ного пространственного заряда снижает величину  $\delta$ , то при переключении под электронным лучом или иглой процесс также определяется фронтальной  $V_{DW}$ . Интересно отметить, что средняя величина фронтальной скорости  $V_{DW} \approx 50$  mm/s в наших экспериментах близка к той же средней величине, наблюдаемой в полях высоковольтного АСМ [30]. Очевидно, требуется новый общий подход к разработке механизма переполаризации кристаллов в условиях сильного локального поля.

Особенностью переключения при записи доменов электронным лучом оказалось значительное увеличение дозы облучения, необходимой для возникновения доменов в волноводе Ti:LiNbO<sub>3</sub>, по сравнению с нелегированным LiNbO<sub>3</sub>. При этом наблюдается увеличение длины доменов  $L$  с глубиной, коррелирующее с уменьшением концентрации Ti. Если в соответствии с литературными данными по волноводам Ti:LiNbO<sub>3</sub> [31] предполагать, что структура кристалла не нарушается большой концентрацией Ti, то для объяснения этого результата можно предложить две возможные причины. Прежде всего возможно увеличение коэрцитивного поля  $E_c$ . Для LiNbO<sub>3</sub> известна сильная зависимость  $E_c$  от состава (стехиометрии, легирования нефоторефрактивными ионами Mg или Zn и т.д.) [4]. Во всех этих случаях величина  $E_c$  уменьшается, что качественно связывается с уменьшением концентрации структурных дефектов Nb<sub>Li</sub> и Li-вакансий. Влияние примесей других типов на величину  $E_c$  не исследовалось, но можно высказать следующие качественные соображения. При низких концентрациях ионы Ti в LiNbO<sub>3</sub> входят в положение Li, по-видимому замещая Nb<sub>Li</sub> [4]. Однако повышение концентрации Ti при формировании волноводов сопровождается экзэмиссией Li, т.е. увеличением концентрации Li-вакансий, что в свою очередь может привести к росту  $E_c$ .

Другой возможной причиной различия формирования доменов в чистом LiNbO<sub>3</sub> и LiNbO<sub>3</sub>:Ti может быть резкое возрастание поверхностной проводимости в Ti-слое, приводящее к быстрому распаду пространственного заряда. Влияние больших концентраций Ti на проводимость LiNbO<sub>3</sub> также не исследовано, но заметим, что такое объяснение требовало бы увеличения проводимости LiNbO<sub>3</sub> при легировании Ti на много порядков, что представляется маловероятным.

Таким образом, в результате проведенных исследований созданы планарные ППС на Y-срезах в подложках LiNbO<sub>3</sub> и в волноводных структурах Ti:LiNbO<sub>3</sub> на их основе путем локальных дискретных облучений поверхности электронным пучком, нормальным полярной оси Z. Их характеристики изучены как химическим травлением, так и оптическими методами, включающими волноводную квазисинхронную ГВГ, визуализацию методами микроскопии ГВГ и рассеяния волноводного пучка на основной частоте и на второй гармонике в излучательные моды.

## Список литературы

- [1] M. Houe, P.D. Townsend. J. Phys. D: Appl. Phys. **28**, 1747 (1995).
- [2] L.I. Myers, R.C. Eckardt, M.M. Fejer, R.L. Byer, W.R. Bosenberg, J.W. Pierce. J. Opt. Soc. Am. B **12**, 2102 (1995).
- [3] M. Yamada. Rev. Sci. Instrum. **71**, 4010 (2000).
- [4] T. Volk, M. Wöhlecke. Lithium niobate: defects, photorefractive and ferroelectric switching. Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg (2008). 247 p.
- [5] M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, K. Watanabe. Appl. Phys. Lett. **62**, 435 (1993).
- [6] H. Itoh, C. Takyu, H. Inaba. Electron. Lett. **27**, 1221 (1991).
- [7] S. Sonoda, I. Tsuruma, M. Hatori. Appl. Phys. Lett. **71**, 3048 (1997).
- [8] C. Restoin, C. Darraud-Taupiac, J.L. Decossas, J.C. Vareille, V. Couderc, A. Barthélémy, A. Martinez, J. Hauden. Appl. Opt. **40**, 6056 (2001).
- [9] J. Son, Y. Yuen, S.S. Orlov, L. Hesselink. OSA TOPS **99**, 756 (2005).
- [10] R. Nevado, E. Cantelar, G. Lifante, F. Cusso. Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L 488 (2000).
- [11] L. Ming, C.B.E. Gawith, K. Gallo, M.V. O'Connor, G.D. Emmerson, P.G.R. Smith. Opt. Express **13**, 4862 (2005).
- [12] B. Vincent, R. Kremer, A. Boudrioua, P. Moretti, Y.-C. Zhang, C.-C. Hsu, L.-H. Peng. In: Conf. on lasers and electro-optics/quantum electronics and laser science and photonic applications systems technologies. Technical Digest (CD). Optical Society of America (2005). Paper JTuC3.
- [13] D. Hofmann, G. Schreiber, C. Haase, H. Herrmann, W. Grundkötter, R. Ricken, W. Sohler. Opt. Lett. **24**, 896 (1999).
- [14] R.V. Schmidt, I.P. Kaminov. Appl. Phys. Lett. **25**, 458 (1974).
- [15] D. Kip. Appl. Phys. B **67**, 131 (1998).
- [16] Волноводная оптоэлектроника / Под ред. Т. Тамира. Пер. с англ. Мир, М. (1991). 575 с.
- [17] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теоретическая физика. Т. III. Квантовая механика (нерелятивистская теория). Наука, М. (1989). 768 с.
- [18] J. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P.S. Pershan. Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).
- [19] L.S. Kokhanchik, D.V. Punegov. Proc. SPIE **7025**, 70250J (2008).
- [20] E. Soergel. Appl. Phys. B **81**, 729 (2005).
- [21] G.I. Stegeman, C.T. Seaton. J. Appl. Phys. **58**, R 57 (1985).
- [22] A.C.G. Nutt, V. Gopalan, M.C. Gupta. Appl. Phys. Lett. **60**, 2828 (1992).
- [23] J. Cazaux. J. Appl. Phys. **59**, 1418 (1986).
- [24] D.B. Li, D.R. Strachan, J.H. Ferris, D.A. Bonnell. J. Mater. Res. **21**, 935 (2006).
- [25] С.О. Фрегатов, А.Б. Шерман. Письма в ЖТФ **23**, 11, 54 (1997).
- [26] С.О. Фрегатов, А.Б. Шерман. ФТТ **41**, 3, 510 (1999).
- [27] В.Г. Залесский, С.О. Фрегатов, А.Б. Шерман. ФТТ **43**, 9, 1669 (2001).
- [28] G. Rosenman, P. Urenski, A. Agronin, Y. Rosenwaks, M. Molotskii. Appl. Phys. Lett. **82**, 103 (2003).
- [29] M. Molotskii. J. Appl. Phys. **93**, 6234 (2003).
- [30] A. Agronin, M. Molotskii, Y. Rosenwaks, G. Rosenman, B.J. Rodriguez, A.I. Kingon, A. Gruverman. J. Appl. Phys. **99**, 104 102 (2006).
- [31] M. Ahmad, K. Chelapathi, Y.G.K. Patro. Appl. Opt. **35**, 1489 (1996).