05

# Нанодоменная инженерия в тонких пленках LNOI на неполярной поверхности

© Я.В. Боднарчук, Р.В. Гайнутдинов, Т.Р. Волк

Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова, КККиФ,
119333 Москва, Россия
e-mail: deuten@mail.ru

Поступило в Редакцию 5 сентября 2024 г.
В окончательной редакции 15 октября 2024 г.
Принято к публикации 17 октября 2024 г.

Представлены результаты записи микро- и нанодоменных структур заданной конфигурации в тонкой пленке LNOI ($LiNbO_3$-on-insulator) неполярной (X-) ориентации полем зонда атомно-силового микроскопа и обсуждены их свойства. Исследование доменных структур проведено методом микроскопии пьезоотклика. Получены зависимости длины доменов от длительности импульса и напряжения, которые хорошо подчиняются экспоненциальной и линейной функциям соответственно. Измерены пьезоэлектрические петли гистерезиса и произведена оценка коэрцитивных и смещающих напряжений. Анализ петель гистерезиса показал, что величины коэрцитивных и смещающих напряжений практически не зависят от времени импульса подаваемого на зонд напряжения.

**Ключевые слова**: доменные структуры, тонкая пленка, атомно-силовая микроскопия, ниобат лития.

DOI: 10.61011/JTF.2025.01.59462.270-24

## Введение

Актуальной задачей на сегодняшний день является поиск сегнетоэлектрических материалов и их производных в качестве работающих нелинейно-фотонных кристаллов. В настоящее время можно выделить два основных направления в этой области исследований, такие как проводимость доменных стенок (domain-wall conductivity–DWC) и нелинейное преобразование оптического излучения на доменной структуре в режиме фазового квазисинхронизма (QPM). На данное время имеются по меньшей мере два наиболее подходящих объекта для решения этих задач. Это Ne:$LiNbO_3$, Ti:$LiNbO_3$ и гелий имплантированные оптические волноводы, сформированные на неполярных (X- и Y-) поверхностях кристалла $LiNbO_3$ [1–5], а также тонкие монокристаллические пленки $LiNbO_3$ ($LiNbO_3$-on-insulator) LNOI [6–9], перенесенные на слоистую структуру — монокристалл ниобата лития с тонким слоем $SiO_2$, и в ряде случаев со слоем металла. Волноводный эффект в тонкой пленке достигается за счет разницы показателей преломления $SiO_2$ и $LiNbO_3$. Формирование регулярной доменной структуры работающихосуществляется либо воздействием электронного пучка растрового электронного микроскопа, либо приложением напряжения к острию зонда атомно-силового микроскопа (АСМ). Кинетика записи отдельных доменов в зависимости от режимов воздействия электронным пучком (ускоряющее напряжение, время воздействия, ток пучка) изучена достаточно хорошо как на монокристаллах ниобата лития, так и на оптических волноводах на его основе, причем и на полярных и неполярных поверхностях. При электронном облучении неполярной поверхности домен, зародившийся в точке облучения, растет вдоль оси $Z$. Движущей силой является тангенциальная составляющая $E_z$ поля пространственного заряда $E_{sc}$, индуцируемого электронным пучком в точке облучения; толщина слоя определяется ускоряющим напряжением $U$ [1,10].

Также имеется достаточное количество работ по кинетике переключения доменов под воздействием поля зонда АСМ на полярных поверхностях пленок LNOI различной толщины. Так, в работах [6–8] получены зависимости размера домена от величины и длительности экспозиции импульса напряжения, прикладываемого к АСМ зонду. Также были измерены петли локального пьезоэлектрического гистерезиса при различных длительностях импульса прикладываемого напряжения. Подробно с методикой измерения локальных петель гистерезиса можно ознакомиться во множестве работ [11,12]. В работе [13] обсуждается влияние влажности окружающей среды на кинетику формирования одиночных доменов и регулярных доменных структур. Тем не менее для реализации нелинейного преобразования оптического излучения на доменной структуре в режиме QPM предпочтительнее использовать неполярные поверхности тонких пленок. Имеется небольшое количество работ по формированию регулярной доменной структуры (РДС) на неполярных поверхностях LNOI [14–16], но в этих работах РДС записывалась путем приложения поля к внешним электродам, с последующим их изучением методами микроскопии пьезоотклика и проводящей АСМ. По нашим представлениям кинетика формирования одиночных доменов в поле зонда АСМ ранее не изучалась. Таким образом, для получения более полной картины микроскопических механизмов доменообразования в настоящей работе была поставлена задача по исследованию кинетики формирования одиночных

доменов в поле зонда АСМ на неполярной поверхности пленок LNOI.

## 1. Образцы и экспериментальные методики

В данном эксперименте были использованы тонкие пленки LNOI ($LiNbO_3$-on-insulator) неполярной (X-) ориентации. В исследуемых образцах толщина волноводного слоя $LiNbO_3$ составляет 703.5 nm, толщина $SiO_2$ 1.905 $\mu$m; общий размер образцов $X \times Y \times Z = 0.5 \times 10 \times 10$ mm.

Запись доменов в поле АСМ зонда с последующим исследованием методом микроскопии пьезоотклика (МПО) проводили на микроскопе NTEGRA Prima (NT-MDT Spectrum Instruments, Зеленоград) в условиях чистой зоны контрольно-измерительного комплекса „TRACKPORE ROOM-05“ (класс чистоты 5 ИСО (100), точность поддержания температуры ($T$) воздушной среды в чистой зоне в диапазоне $25 \pm 5^\circ$C составляла $\pm 0.05^\circ$C, относительная влажность воздуха в диапазоне $40 \pm 10\%$ поддерживалась с точностью $\pm 1\%$). В экспериментах использовались кремниевые кантилеверы (HA_FM, балка B, ООО „Капелла“, Зеленоград), покрытые Pt, которые имели следующие характеристики: резонансная частота $f = 77$ kHz, жесткость $k = 3.5$ N/m, радиус закругления острия $R < 3535$ nm. Изучение доменной структуры проводилось в латеральном режиме МПО. Запись доменов осуществлялась с помощью приложения постоянного напряжения UDC зонда АСМ в тонкой пленке LNOI и схематически представлена на рис. 1. Для записи доменов был использован метод векторной литографии по графическому шаблону, созданному заранее с разными интервалами между записями путем приложения $U_{DC}$ между проводящим зондом, находящимся в контакте с неполярной (X-) поверхностью. Петли локального пьезоэлектрического гистерезиса $H_\omega - U_{DC}$ были получены путем приложения в данной точке кристалла цуга импульсов напряжения $U_{DC}$ с меняющейся амплитудой от $+50$ до $-50$ V и затем от $-50$ до $+50$ V с шагом амплитуды 100 mV ($H_\omega$ — сигнал электромеханического отклика). Длительность импульсов напряжения $t_p$, постоянная для данного цикла, варьировалась от 10 до 1000 ms для разных циклов, интервал между импульсами 10 ms. Измерение сигнала пьезоотклика осуществлялось в интервале между импульсами при $U_{DC} = 0$ V.

## 2. Результаты и обсуждения

### 2.1. Запись доменов в тонкой пленке LNOI с помощью АСМ

Ниобат лития $LiNbO_3$ из-за значительно высоких коэрцитивных полей $E_c = 220$ kV/cm в конгруэнтном и 60 kV/cm в стехиометрическом составе изучен недостаточно хорошо в микроскопическом масштабе. По-

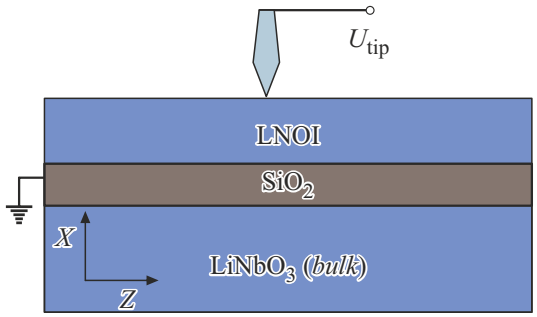



**Рис. 1.** Схема записи доменов зондом АСМ в тонкой пленке LNOI неполярной (X-) ориентации.

этому большим преимуществом понимания процессов в базовом материале оптоэлектроники служат такие материалы, как тонкие пленки LNOI ($LiNbO_3$-on-insulator). Тонкая пленка LNOI перспективна для ряда применений [17–20], а также удобна для исследования процессов переключения, исследования петель гистерезиса и родственных сегнетоэлектрических эффектов. Использование современных методов АСМ в диагностике и исследованиях тонких пленок LNOI дают ряд преимуществ в понимании процессов более детально. На рис. 1 представлена блок-схема структуры, содержащей тонкую пленку LNOI, слой оксида кремния $SiO_2$ и следующий за ним объемный кристалл $LiNbO_3$. Рис. 1 иллюстрирует запись доменов на тонкой пленке LNOI неполярной (X-) ориентации зондом АСМ.

Далее обсудим более детально процессы АСМ записи на неполярном срезе в тонкой пленке LNOI. Домены, записанные с помощью зонда АСМ стабильны и не деградируют в течение периода наблюдений (несколько месяцев). На рис. 2 представлены МПО изображения записанных одиночных доменов с помощью векторной литографии АСМ. Домен, зародившийся в точке записи, прорастает фронтально вдоль полярной оси $+Z$ в тонком слое под действием тангенциальной компоненты поля $E_z$, созданной в точке контакта зонда АСМ с поверхностью. На рис. 2 домен вытянут вдоль полярной оси $Z$, сам вид домена представляет собой форму „капли или иглы“, где $L \gg D$, и в точке записи домен шире, чем с другого края ($L$ — длина домена вдоль полярной оси, $D$ — ширина в ортогональном направлении). Процесс формирования домена при локальной записи зондом АСМ похож на процесс формирования домена при электронном облучении, где иглообразная форма домена при электронной лучевой записи была продемонстрирована во множестве работ [2,10].

После записи доменов была произведена визуализация доменов в режиме МПО, и был произведен расчет записанных одиночных доменных структур при различных длительностях импульса $t_p = 500-5000$ ms. После записи размеры доменов были обсчитаны в программе SPIP. Зависимости длины домена от длительности импульса представлены на рис. 3.

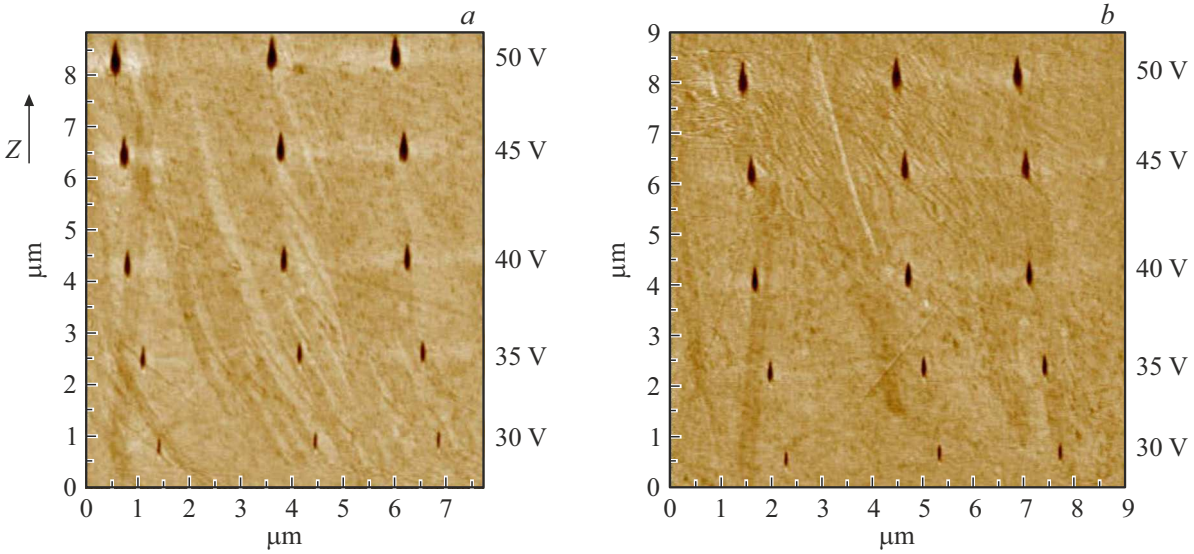



**Рис. 2.** МПО изображения записанных одиночных доменов с помощью векторной литографии АСМ: *a* — длительность импульса $t_p = 1$ s; *b* — длительность импульса $t_p = 5$ s; напряжение $U_{DC} = 30-50$ V.

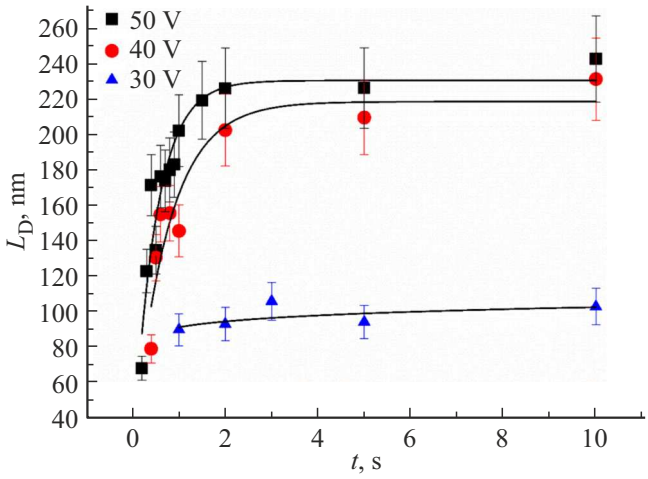



**Рис. 3.** Зависимость длины домена $L_D$ от длительности импульса при напряжениях $U_{DC} = 30-50$ V.

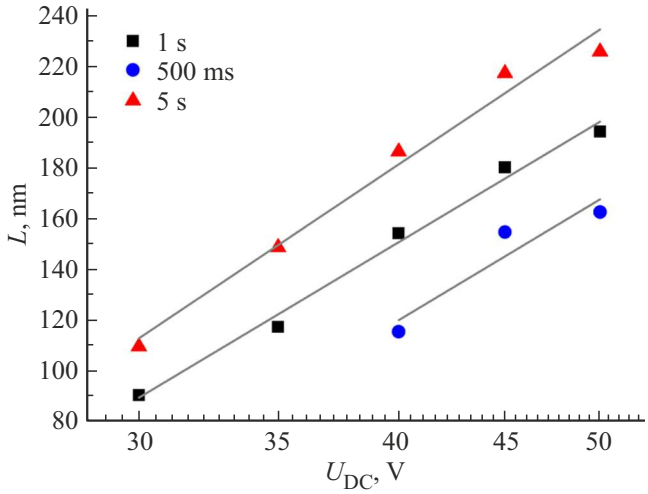



**Рис. 4.** Зависимость длины домена от напряжения $L(U_{DC})$ при $t_p = 500$ ms, 1 и 5 s соответственно.

Домены были записаны в диапазоне напряжений $U_{DC} = 30-50$ V, где меньше 30 V по напряжению домены не визуализировались. Данные были аппроксимированы экспоненциальной функцией $y = k\exp(x/t) + y_0$. На рис. 3 видно различие в кривых роста для доменов, записанных при 30 V, и для доменов, записанных при 40–50 V. Выход кривой в насыщение для данных при 30 V характеризуется более низким с коэффициентом $k = 26$ и временем $t = 929$ s, что может быть причиной зарождения и последующего фронтального роста только в тонком приповерхностном слое. Тогда как для 40 V коэффициент $k = 282$ и время $t = 471$ s, для 50 V коэффициент $k = 249$ и время $t = 349$ s. Из данных коэффициентов видно, что при более высоком напряжении переключение происходит при более коротких временах $t_p$ и процесс переключения для 40–50 V практически одинаков. Данный рост доменов, согласно экспоненциальной функции, происходит в низких и средних полях.

Далее были исследованы зависимости длины доменов $L_D(U_{DC})$ при $t_p = \text{const}$, представленные на рис. 4.

Данные зависимости $L(U_{DC})$ хорошо описываются линейной функцией, что было получено ранее при исследовании тонких пленок полярной ориентации [7,8]. Домены появляются при определенных пороговых напряжениях $U_{thr}$ (в нашем случае $\geq 30$ V), которое уменьшается с ростом длительности импульса. Однако для закрепления образовавшихся доменов необходима определенная длительность импульса, тогда как они исчезают при

более коротких $t_p$. В этом проявляется эффект обратного переключения, характерный для $LiNbO_3$ [21].

### 2.2. Петли гистерезиса

Рассмотрим вопрос, связанный с петлями гистерезиса. Пьезоэлектрические петли гистерезиса были получены с помощью непрямого измерения (АСМ методики), где наблюдаемая форма петли гистерезиса не может быть напрямую интерпретирована в терминах спонтанной поляризации $P_s$ и коэрцитивного поля $E_c$. Но при этом амплитуда и ширина петель качественно характеризует остаточную поляризацию $P_{rem}$ и коэрцитивное напряжение $U_c$. На рис. 5 представлены результаты исследований петель гистерезиса LNOI в диапазоне длительности импульса $t_p$ от 10 до 1000 ms. Петли, полученные при заданных условиях, были измерены в близко расположенных точках поверхности в пределах одного АСМ скана. Наблюдаемые в LNOI петли сильно смещены и униполярны, однако с увеличением $t_p$ не происходит увеличение $P_{rem}$, что говорит о том, что нет пиннига на доменных границах или он очень слабый. Тогда, как в гелий имплантированном волноводе He:$LiNbO_3$ [22], распределение петель гистерезиса зависит от частоты петли, и петли гистерезиса пространственно разбросаны, о чем свидетельствует явный пиннинг на волноводном (запирающем) слое.

На основе полученных петель гистерезиса были рассчитаны коэрцитивное напряжение $U_c$ и напряжение смещения $U_b$, представленные в таблице. Из этих данных видно, что с увеличением $t_p$ происходит незначительное уменьшение $U_c$, что может быть приборной погрешностью в измерениях ($< 10\%$), а не с пиннингом на интерфейсе. В ранее опубликованных работах по переключению тонких пленок LNOI со слоем золота [6] наблюдалось отсутствие обратного переключения

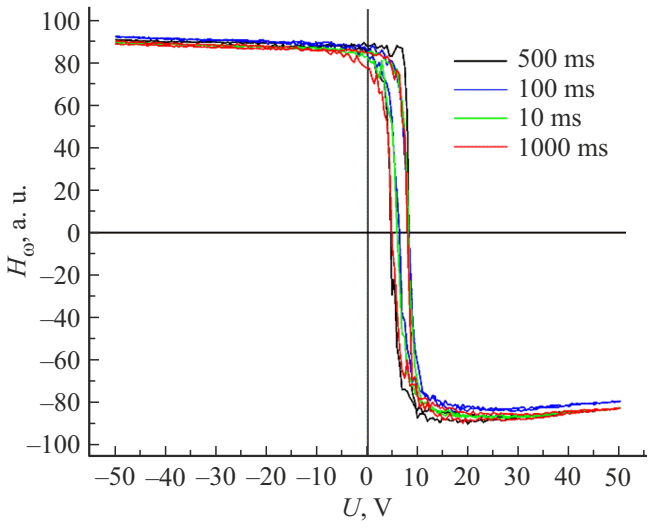



**Рис. 5.** Пьезоэлектрические петли гистерезиса в LNOI, полученные в близко расположенных точках поверхности при $t_p$ от 10 до 1000 ms.

$U_b$ и $U_c$, полученные из петель гистерезиса

| $t_p$, ms | $U_c$, V | $U_b$, V |
|---|---|---|
| 10 | 7.32 | 1.093 |
| 100 | 7.046 | 0.987 |
| 500 | 6.168 | 1.582 |
| 1000 | 6.49 | 1.45 |

и увеличение напряжения смещения $U_b$ по сравнению с объемным кристаллом.

## Заключение

В тонкой пленке LNOI ($LiNbO_3$-on-insulator) неполярной (X-) ориентации толщиной 703.5 nm были записаны микродоменные структуры с помощью зонда АСМ и исследованы их свойства. Полученные зависимости длины доменов $L_D$ от длительности импульса $t_p$ и напряжения $U_{DC}$ были аппроксимированы экспоненциальными и линейными функциями соответственно, что показывает сходство в кинетиках в ранее полученных результатах по тонким пленкам (Z-) и в гелий имплантированном волноводе (Z-) ориентации. Было показано, что домены появляются при пороговом напряжении 30 V и выше, так как до $< 30$ V происходит или обратное переключение, или не происходит пиннинг домена на интерфейсе. При увеличении напряжения переключение происходит при меньших длительностях импульса $t_p$. Обнаружено, что коэрцитивное напряжение и поле смещения практически не зависят от времени приложения импульса, что свидетельствует о сходных механизмах на полярных и неполярных срезах. Устойчивость и стабильность записанных доменных структур хорошо согласуются с ранее полученными результатами в ниобате лития и его производных структурах.

### Финансирование работы

Работа выполнена в рамках Государственного задания НИЦ „Курчатовский институт“.

### Благодарности

Работа проведена в рамках выполнения государственного задания НИЦ „Курчатовский институт“ с использованием оборудования ЦКП „Структурная диагностика материалов“.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы


[1] Л.С. Коханчик, М.В. Бородин, С.М. Шандаров, Н.И. Буримов, В.В. Щербина, Т.Р. Волк. ФТТ, **52** (8), 1602 (2010). [L.S. Kokhanchik, M.V. Borodin, S.M. Shandarov, N.I. Burimov, V.V. Shcherbina, T.R. Volk. Physics Solid State, **52** (8), 1722 (2010). DOI: 10.1134/S106378341008024X]

[2] L.S. Kokhanchik, M.V. Borodin, N.I. Burimov, S.M. Shandarov, V.V. Shcherbina, T.R. Volk. IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Waveguide Applications **59**, 1076 (2012). DOI: 10.1109/TUFFC.2012.2298

[3] T.R. Volk, L.S. Kokhanchik, R.V. Gainutdinov, Y.V. Bodnarchuk, S.M. Shandarov, M.V. Borodin. J. Lightwave Tech., **33** (23), 4761 (2015). DOI: 10.1109/JLT.2015.2480496

[4] D. Lavrov, L.S. Kokhanchik, R.V. Gainutdinov, A.S. Elshin, Ya.V. Bodnarchuk, E.D. Mishina, T.R. Volk. Opt. Mater., **75**, 325 (2018). DOI: 10.1016/j.optmat.2017.10.046

[5] S.M. Shandarov, L.S. Kokhanchik, T.R. Volk, E.N. Savchenkov, M.V. Borodin. Quant. Electron., **48**, 761 (2018). DOI: 10.1070/QEL16710

[6] R.V. Gainutdinov, T.R. Volk, H. Zhang. Appl. Phys. Lett., **107**, 162903 (2015). DOI: 10.1063/1.4934186

[7] T.R. Volk, R.V. Gainutdinov, H. Zhang. Appl. Phys. Lett., **110**, 132905 (2017). DOI: 10.1063/1.4978857

[8] T.R. Volk, R.V. Gainutdinov, H. Zhang. Crystals, **7**, 137 (2017). DOI: 10.3390/cryst7050137

[9] R. Gainutdinov, T. Volk. Crystals, **10**, 1160 (2020). DOI: 10.3390/cryst10121160

[10] T.R. Volk, L.S. Kokhanchik, R.V. Gainutdinov, Y.V. Bodnarchuk, S.D. Lavrov. J. Adv. Dielectrics, **8** (2), 1830001 (2018). DOI: 10.1142/S2010135X18300013

[11] А.В. Анкудинов, А.Н. Титков. ФТТ, **47**, 1110 (2005).

[12] A. Kholkin, S. Kalinin, A. Roelofs, A. Gruverman. *Review of Ferroelectric domain imaging by piezoresponse force microscopy* (Scanning Probe Microscopy. S. Kalinin, A. Gruverman. Ed.: Springer, NY., 2007), p. 173–214.

[13] B.N. Slautin, A.P. Turygin, E.D. Greshnyakov, A.R. Akhmatkhanov, H. Zhu, V.Ya. Shur. Appl. Phys. Lett., **116**, 152904 (2020). DOI: 10.1063/5.0005969

[14] A. Prencipe, K. Gallo. IEEE J. Quant. Electron., **59** (3), 0600108 (2023). DOI: 10.1109/JQE.2023.3234986

[15] D. Sun, Y. Zhang, D. Wang, W. Song, X. Liu, J. Pang, D. Geng, Y. Sang, H. Liu. Light: Sci. Applicat., **9**, 197 (2020). DOI: 10.1038/s41377-020-00434-0

[16] J. Ma, N. Zheng, P. Chen, X. Xu, Y. Zhu, Yu. Nie, Sh. Zhu, M. Xiao, Y. Zhang. Opt. Express, **32** (8), 14801 (2024). DOI: 10.1364/OE.518885

[17] J. Seidel, L.W. Martin, Q. He, Q. Zhan, Y.-H. Chu, A. Rother, M.E. Hawkridge, P. Maksymovych, P. Yu, M. Gajek, N. Balke, S.V. Kalinin, S. Gemming, F. Wang, G. Catalan, J.F. Scott, N.A. Spaldin, J. Orenstein, R. Ramesh. Nat. Mater., **8**, 229 (2009). DOI: 10.1038/nmat2373

[18] G. Catalan, J. Seidel, R. Ramesh, J.F. Scott. Rev. Mod. Phys., **84**, 119 (2012). DOI: 10.1103/RevModPhys.84.119

[19] P.S. Bednyakov, B.I. Sturman, T. Sluka, A.K. Tagantsev, P.V. Yudin. Comp. Mater., **4**, 65 (2018). DOI: 10.1038/s41524-018-0121-8

[20] M. Rusing, P.O. Weigel, J. Zhao, S. Mookhrjea. IEEE Nanotechnol. Magazine, **13**, 18 (2019). DOI: 10.1109/MNANO.2019.2916115

[21] V. Gopalan, Q. Jia, T.E. Mitchell. Appl. Phys. Lett., **75** (16), (1999). DOI: 10.1063/1.125055

[22] Ya.V. Bodnarchuk, R.V. Gainutdinov, T.R. Volk, F. Chen. J. Lightwave Technol., **40**, 5231 (2022). DOI: 10.1109/JLT.2022.3175021