

Особенности формирования иглообразных доменов в поверхностном слое ниобата лития X-среза

© В.Д. Паранин

Самарский государственный аэрокосмический университет им. акад. С.П. Королева
(национальный исследовательский университет),
443086 Самара, Россия
e-mail: vparanin@mail.ru

(Поступило в Редакцию 20 марта 2014 г.)

Исследованы механизмы формирования иглообразных доменов в поверхностном слое X-среза ниобата лития под действием электрического поля контактных электродов. Установлено, что напряжение до 630–660 В формирует в межэлектродном зазоре $140 \pm 5 \mu\text{m}$ стабильные во времени иглообразные домены длиной до 20–30 μm , ориентированные вдоль полярной оси кристалла параллельно силовым линиям поля. Показано, что напряжение 686–713 В вызывает скачкообразное увеличение размеров доменов и существенное увеличение скорости их роста до $\sim 1 \mu\text{m/s}$. Локализация доменов наблюдается в пределах 300–600 μm от края электродов вследствие увеличения напряженности электрического поля вблизи прямоугольных углов. Выявлено существенное отличие размеров доменов, определяемое микроскопическими дефектами границ электродов.

Введение

На основе доменных микроструктур в ниобате лития разработаны преобразователи частоты лазерного излучения, волноводные датчики электрического поля, фотонно-кристаллические волноводы [1]. Запись доменных структур осуществляется электронным пучком [2], оптическим излучением [3], сканирующими [4] или контактными электродами [5], а также сочетанием этих методов.

Использование контактных электродов, изготовленных методами оптической литографии, представляется весьма перспективным по следующим причинам. Во-первых, запись доменов осуществляется одновременной на большой площади кристалла, что выгодно отличает их от сканирующих электронных и оптических пучков, подвижных иглообразных электродов. Во-вторых, сохраняется возможность электрического управления доменной структурой после ее изготовления.

Недостатком контактного метода является большой размер формируемых доменов — порядка 1–10 μm против 0.1 μm при использовании сфокусированного электронного пучка. Этот недостаток можно преодолеть уменьшением размеров электродов, использованием электродов и электрических полей специальной формы, эффективно инжектирующих носители заряда в область поверхности или объема кристалла.

Для создания доменов с размерами ~ 0.1 –1 μm необходимо изучить начальный этап их зарождения и развития, когда объединения доменов не произошло. Знание механизмов зарождения и роста доменов позволит обеспечить минимальные размеры доменных структур. Подобная кинетика развития доменов изучалась в работе [6] для Z-среза ниобата лития при формировании сквозных объемных доменов.

Целью настоящей работы являлось экспериментальное исследование начального этапа формирования доменов в X-срезе кристалла ниобата лития.

Методика подготовки образцов и проведения эксперимента

В экспериментальных исследованиях использовались кристаллы нелегированного монокристаллического ниобата лития конгруэнтного состава производства ООО „ЭЛАН+“ (Санкт-Петербург). Размер кристаллов составляли $15 \times 15 \times 1 \text{ mm}$. Кристаллы полировались алмазной суспензией до чистоты поверхности РПН по ГОСТ 11141-84, шероховатости $R_a < 2.0 \text{ nm}$. Электроды формировались на поверхности X-среза кристалла перпендикулярно полярной оси. Период решетки электродов составлял $d = 300 \pm 5 \mu\text{m}$, межэлектродный зазор $a = 140 \pm 5 \mu\text{m}$, длина электродов — 8 мм, ширина решетки — 12 мм. Структура электродов включала адгезионный слой хрома толщиной 10 нм и проводящий слой меди толщиной 250 нм. Любая пара соседних электродов была подключена к разноименным полюсам источника напряжения. Электрическая изоляция межэлектродных зазоров обеспечивалась прозрачным акриловым лаком Plastik 70 с прочностью до 70 В/ μm . Лак наносился аэрозольным методом и формировал гладкий глянцевый слой без видимых дефектов толщиной 20–30 μm . Использование изоляционного лака предотвращало поверхностный электрический пробой и разрушение управляющих электродов при напряжении более 500 В. Высокая электрическая прочность и малая проводимость ниобата лития не позволяла развиваться объемному пробую. Электрическое сопротивление образцов составляло не менее 1.5 Г Ω .

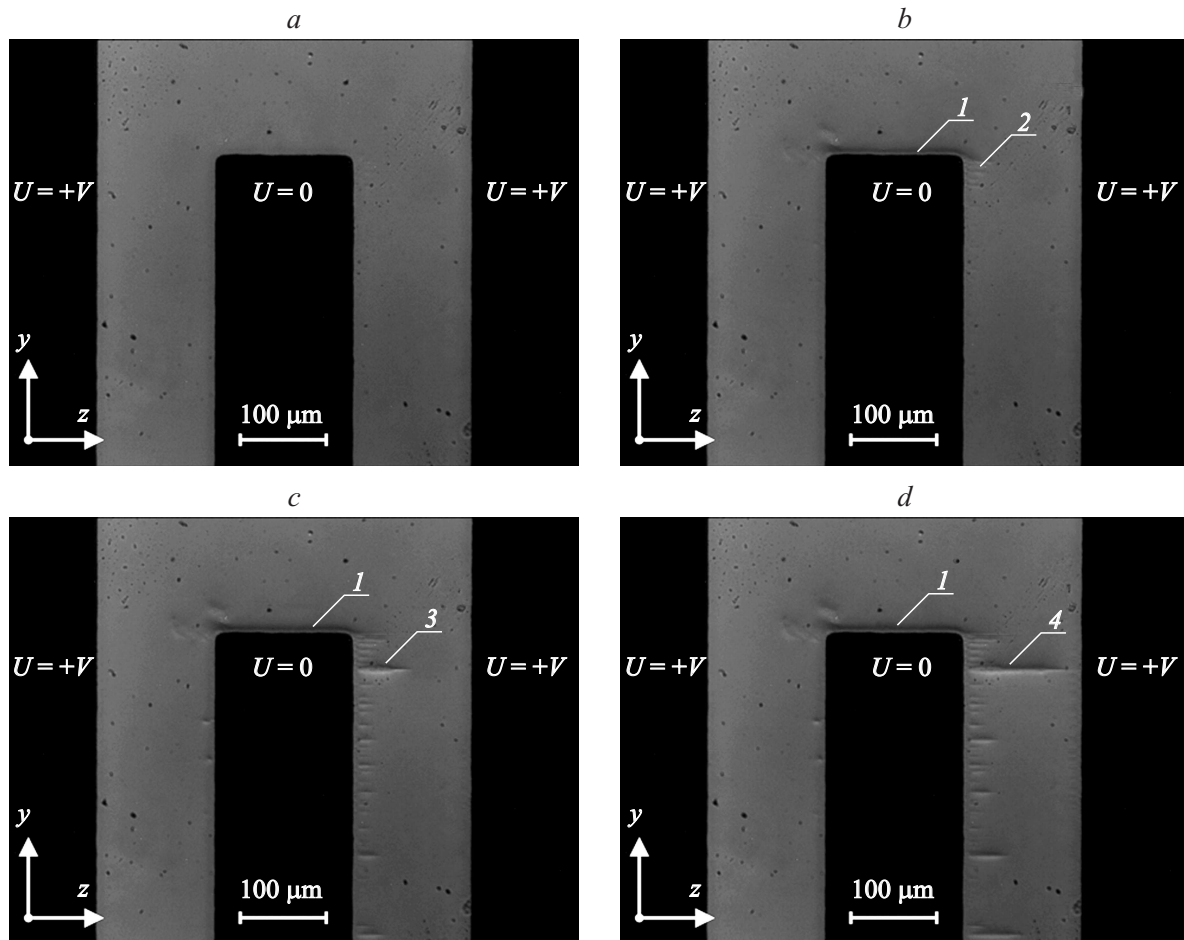


Рис. 1. Образование доменов в межэлектродном зазоре: *a* — напряжение 0 V, *b* — напряжение 660 V, *c* — напряжение 686 V, *d* — напряжение 686 V с выдержкой 60 s: 1 — перераспределение поверхностного заряда полем E_y у торца электрода, 2 — начальный этап формирования иглообразных доменов полем E_z , 3 — скачкообразное увеличение размеров доменов, 4 — прорастание иглообразных доменов до положительного электрода.

Электрическое напряжение до 800 V с пульсациями не более 0.2 V создавалось аналоговым источником. Напряжение измерялось вольтметром GDM-78251A с пределом измерения 1000 V и основной погрешностью не более 0.012%. При измерении использовался высокоомный делитель с коэффициентом деления 2.187, определяемым экспериментально. Шаг изменения напряжения был равен 20–25 V, длительность приложения напряжения на каждом шаге составляла 60 s.

Пропускание межэлектродных зазоров исследовалось в поляризационном микроскопе Биомед-5П с галогеновым осветителем мощностью $\sim 0.5 \text{ W/mm}^2$ на поверхности кристалла. В процессе исследования осветитель не выключался. Ось поляризатора ориентировалась параллельно Y-оси кристалла, ось анализатора — под углом 15° к Y-оси кристалла. Изображение межэлектродных зазоров регистрировалось ПЗС-камерой DCM 310 с разрешением 1024×768 . Для исключения появления фоторефрактивных неоднородностей в ниобате лития использовался длинноволновый светофильтр с граничной длиной волны 580 nm.

Экспериментальные результаты

Поляризационный метод наблюдения основан на повороте оптической индикатрисы кристалла под действием электрических полей, который изменяет поляризацию проходящего излучения. Это изменение поляризации обуславливает осветление или потемнение наблюдаемой поверхности за счет использования поляридов, установленных после образца.

Рассмотрим уравнение индикатрисы X-среза ниобата лития в приближении линейного электрооптического эффекта [7] и определим механизмы ее изменения:

$$\left(\frac{1}{n_0^2} + r_{22}E_y + r_{13}E_z\right)y^2 + \left(\frac{1}{n_e^2} + r_{33}E_z\right)z^2 + 2yzr_{51}E_y = 1, \quad (1)$$

где n_0, n_e — обыкновенный и необыкновенный показатели преломления ниобата лития; $r_{13}, r_{22}, r_{33}, r_{51}$ — линейные электрооптические коэффициенты, м/V; E_y —

напряженность электрического поля перпендикулярного полярной оси, V/m ; E_z — напряженность электрического поля параллельного полярной оси, V/m .

Из (1) следует, что напряженность поля E_y вызывает поворот оптической индикатрисы и изменение яркости наблюдаемой области кристалла. Напряженность E_y для рассматриваемого случая создается либо электрическим полем иглообразных доменов, ориентированных вдоль полярной оси Z , либо электрическим полем торцов электродов, перпендикулярных полярной оси. Причем одно направление поля E_y вызывает потемнение поля зрения микроскопа, а противоположное — ее просветление, поскольку изменение показателя преломления имеет первый порядок по напряженности.

На рис. 1 приведены фотографии доменов в межэлектродных зазорах при различных напряжениях.

При отсутствии напряжения поверхность кристалла имела однородный серый окрас (рис. 1, *a*). Электроды обладали достаточной толщиной и сплошностью структуры и были непрозрачны для галогенового освещения (показаны черным).

При напряжениях 120–130 В наблюдалось возникновение темной и светлой полос, параллельных торцам положительных и отрицательных электродов (участок 1 на рис. 1, *b*). Наблюдение полос в приэлектродной области шириной 15–20 μm при расстоянии от торца отрицательного электрода до верхнего положительного 500 μm сообщает о локализации электрического поля E_y . Следовательно, можно предположить наличие слабосвязанных зарядов в поверхностном слое кристалла, перемещаемых полем электродов $E_y \sim 0.5 V/\mu m$ перпендикулярно полярной оси. Эти заряды оказывают экранирующее действие на поле торца отрицательного электрода.

При напряжениях от 120–130 до 630–660 В между электродами наблюдались иглообразные домены длиной до 25–30 μm , ориентированные вдоль полярной оси параллельно силовым линиям поля электродов. Зарождение доменов начинается у электрода с отрицательным потенциалом. Их наблюдение было возможным регулировкой механизма точной фокусировки в пределах 10–20 μm .

Домены состоят из двух частей: одна часть имеет приблизительно равномерную ширину, а вторая представляет собой иглообразную вершину, ориентированную острым концом в направлении роста. На рис. 2 приведена фотография типичного домена, наблюдаемого в поляризационном микроскопе.

Исследование роста иглообразных доменов показало, что при напряжении до 630–660 В их длина определяется только приложенным напряжением (область 2 на рис. 1, *b*). Изменение длины области заряда во времени практически не наблюдается (или оно не превосходит 0.03 $\mu m/s$). По достижении 686 В происходит скачкообразное увеличение размеров домена в 2–3 раза (область 3 на рис. 1, *c*), а также увеличение их количества. Начиная с 686–713 В их длина увеличивается со скоростью $\sim 1 \mu m/s$ при постоянном напряжении. Таким обра-

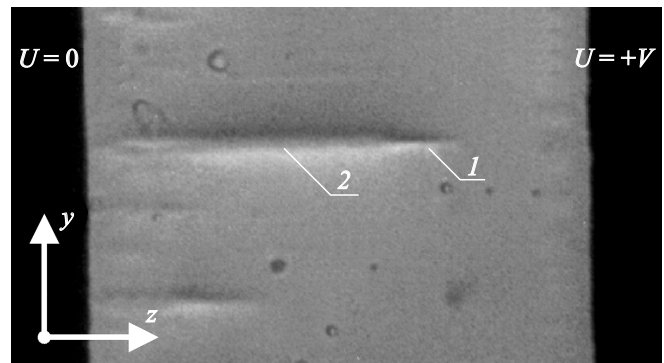


Рис. 2. Иглообразные домены, ориентированные вдоль полярной оси: 1 — основная часть домена, 2 — иглообразная вершина.

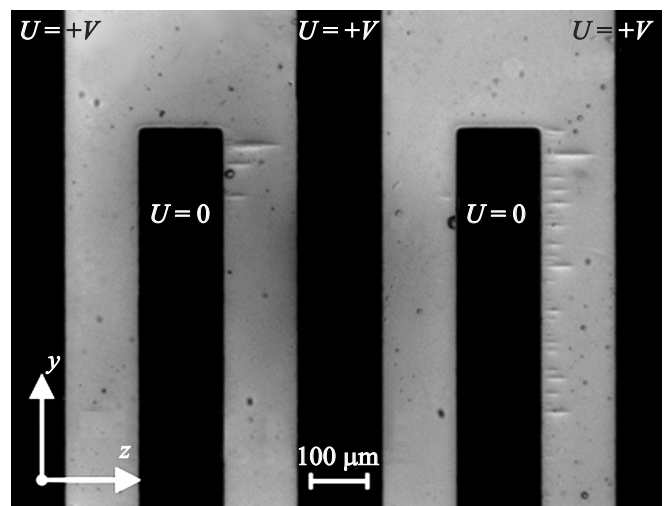


Рис. 3. Образование иглообразных доменов на концах электродов.

зом, в течение 1–2 min формируются сквозные домены между положительным и отрицательным электродами (область 4 на рис. 1, *d*).

Наличие иглообразных доменов наблюдалось только вблизи торцов электродов, на длине не более 300–600 μm при длине электрода 8 mm (рис. 3). Причем наиболее крупные домены располагались весьма близко к прямоугольным углам электродов.

Краевая локализация доменов объясняется повышенной напряженностью электрического поля E_z , действующего вблизи края электрода. На рис. 4 приведено расчетное распределение поля для X -среза ниобата лития с шириной межэлектродного зазора $a = 140 \mu m$ и периодом электродов $d = 300 \mu m$ при $\epsilon_y = 83$, $\epsilon_z = 25$ [8]. Распределение поля было получено с использованием коммерческой программы COMSOL Multiphysics, основанной на численном решении уравнения Лапласа. Межэлектродное напряжение задавалось равным 1 В. Моделируемая структура соответствовала размерам ре-

ального образца, радиус закругления электродов равен $R = 10 \mu\text{m}$.

Из расчетных данных следует, что плотность эквипотенциальных линий вблизи прямоугольного края электрода увеличена. Следовательно, напряженность поля E_z повышена по сравнению с межэлектродным значением V/a . На рис. 5 показана расчетная напряженность поля E_z на различных расстояниях от торца электрода вдоль оси Y .

Из расчетов следует, что вблизи края электрода напряженность поля превышает величину $V/a \approx 0.0067 \text{ V}/\mu\text{m}$ на десятки–сотни процентов при расстоянии от торца, сравнимом с межэлектродным зазором. Поскольку образование доменов является пороговым процессом, то небольшого превышения напряженности (в несколько процентов) достаточно для их зарождения в краевой области зазора.

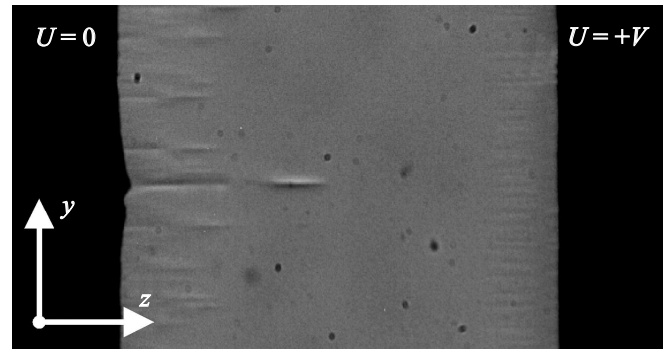


Рис. 6. Образование домена на выступе электрода.

На рис. 1, *c, d* видно, что размеры даже близко расположенных доменов значительно отличаются. Поскольку увеличение напряженности поля E_z объясняет только локализацию доменов, можно предположить влияние топологических дефектов электродов. Так, на выступах и впадинах границ электродов размером $2\text{--}5 \mu\text{m}$ наблюдались достаточно крупные домены. Выступы электродов формировали домены даже в средней части межэлектродных зазоров (рис. 6). Форма доменов на рис. 6 несколько отличается от приведенной на рис. 2, 3, так как после снятия напряжения через несколько суток происходит разбиение домена на две области — связанную с электродом и изолированную.

Роль выступов и впадин электродов заключается в увеличении линейной плотности заряда вдоль оси Y . Этот заряд инжектируется в поверхностный слой кристалла и перемещается электрическим полем вдоль оси Z , образуя более крупный домен. Склонность доменов к образованию на дефектах топологии электродов делает привлекательным использование остроконечных электродов (или впадин) для создания доменных микроструктур с периодом единицы–десятки микрометров и менее.

Время жизни доменов составляет не менее нескольких недель при незакороченных электродах, что обусловлено низкой проводимостью кристалла. Нагрев образцов на воздухе при $150\text{--}170^\circ\text{C}$ в течение 10 min полностью устраняет домены, различимые в поляризационном микроскопе. Это подтверждает их формирование носителями заряда с небольшой энергией связи $kT/e \sim 0.036\text{--}0.038 \text{ eV}$.

Заключение

Исследован начальный этап образования доменов в поверхностном слое X-среза конгруэнтного ниобата лития. Показано образование размерно-стабильных иглообразных доменов вдоль полярной оси при напряжении до $630\text{--}660 \text{ V}$ в межэлектродном зазоре $140 \pm 5 \mu\text{m}$. Установлен скачкообразный характер увеличения доменов и скорости их роста до $\sim 1 \mu\text{m/s}$ при напряже-

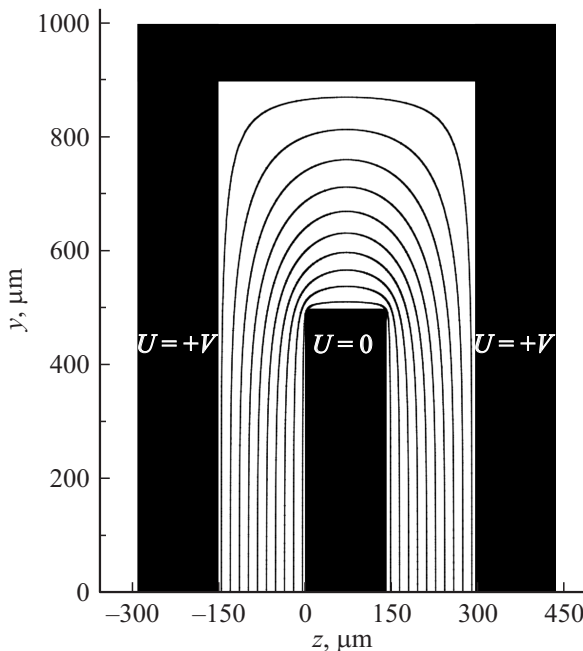


Рис. 4. Расчетное распределение электрического поля электродов.

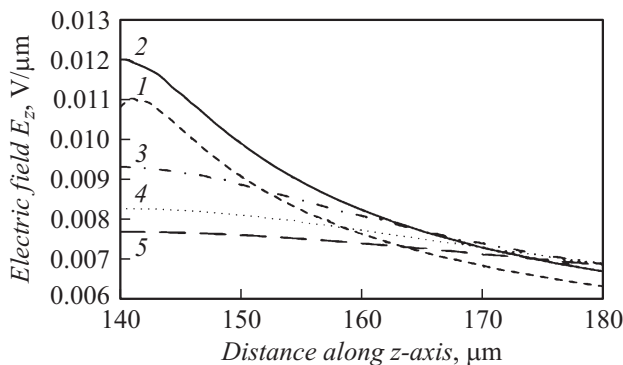


Рис. 5. Расчетная напряженность поля E_z на различных расстояниях от торца электрода, μm : 1 — $y = 500$, 2 — 480, 3 — 460, 4 — 440, 5 — 420.

ниях 686–713 V. Выявлены области пространственного заряда шириной 15–20 μm у торцов отрицательных электродов, формируемых электрическим полем, перпендикулярным полярной оси.

Отмечено формирование доменов у краев электродов на длине не более 300–600 μm . Наиболее крупные домены расположены вблизи прямоугольных краев электродов. Локализация доменов в этой области определяется повышенной напряженностью электрического поля. Существенные отличия размеров доменов объясняются дефектами топологии электродов, которые являются эффективными инжекторами электронов в поверхностный слой кристалла.

Все отмеченные области заряда устраняются нагревом образцов на воздухе при 150–170°C в течение 10 min. Это подтверждает наличие в поверхностном слое X-среза конгруэнтного ниобата лития носителей заряда с энергией связи $kT/e \sim 0.036\text{--}0.038\text{ eV}$. Эти носители заряда перемещаются на десятки–сотни микрометров электрическим полем с напряженностью $> 4.7\text{--}4.9\text{ V}/\mu\text{m}$ вдоль полярной оси и $> 0.5\text{ V}/\mu\text{m}$ перпендикулярно полярной оси.

Список литературы

- [1] Чаплыгин Ю.А. Нанотехнологии в электронике. М.: Техносфера, 2005. 448 с.
- [2] Емелин Е.В. и др. // ФТТ. 2013. Т. 55. Вып. 3. С. 489–495.
- [3] Shoujun Zheng et al. // Opt. Mater. Express. 2014. Vol. 4. N 2. P. 272–279.
- [4] Фрегатов С.О., Шерман А.Б. // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 24. N 6. С. 52–57.
- [5] Голенищев-Кутузов А.В. и др. // УФН. 2000. Т. 170. С. 697–712.
- [6] Шур В.Я. и др. // ФТТ. 1999. Т. 41. Вып. 10. С. 1831–1837.
- [7] Ярив А., Юх П. Оптические волны в кристаллах. М.: Мир, 1987. 616 с.
- [8] Бурханов А.И. и др. // Материалы международной НТК INTERMATIC-2011. 2011. Ч. 2. С. 110–113.