

## Регулярные доменные структуры, созданные электронным лучом в стехиометрических кристаллах $\text{LiNbO}_3$

© Л.С. Коханчик<sup>1</sup>, М.Н. Палатников<sup>2</sup>, О.Б. Щербина<sup>2</sup>

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

<sup>2</sup>Институт химии и технологии редких элементов и минерального сырья им. И.В. Тананаева КНЦ РАН, Апатиты, Мурманская обл., Россия

E-mail: mlk@iptm.ru

Осуществлена электронно-лучевая запись регулярных доменных структур в Z-срезах кристаллов  $\text{LiNbO}_3$  толщиной 0.75 mm стехиометрического и близкого к стехиометрическому составов. Кристаллы выращены методом Чохральского из расплава с избытком  $\text{Li}_2\text{O}$  (58.6 mol.%) и из расплава конгруэнтного состава в присутствии 6 wt.% щелочного растворителя (флюса) —  $\text{K}_2\text{O}$ . В обоих кристаллах определены пороговые дозы заряда, необходимые для формирования индивидуальных доменов, и найдены оптимальные условия рисования периодических структур путем последовательных локальных облучений. Доменные решетки похожего типа (периоды 6.5; 7 и 10  $\mu\text{m}$ ) сформированы в обоих типах стехиометрических кристаллов.

Работа частично поддержана РФФИ (гранты © 09-02-00609а и 09-03-00141а).

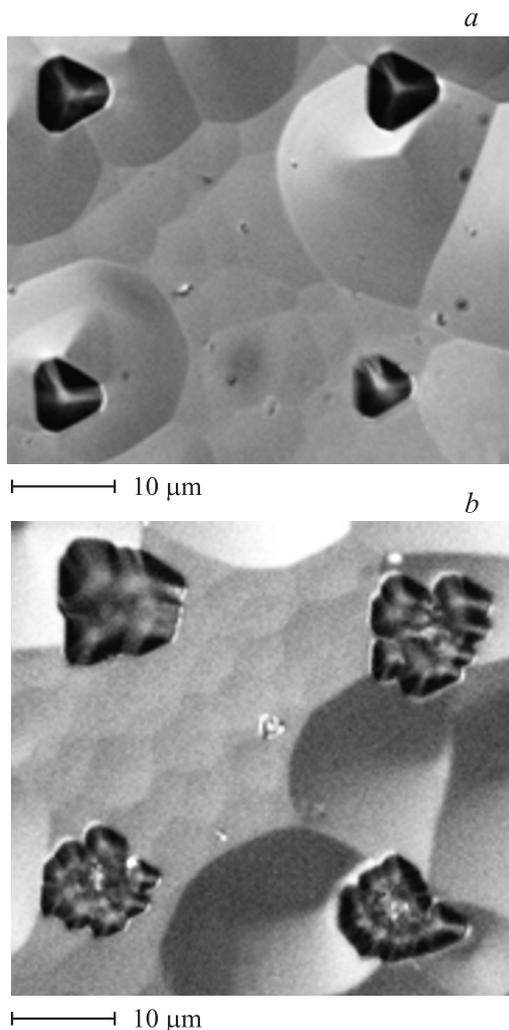
В настоящей работе исследуются возможности электронно-лучевой записи регулярных доменных структур (РДС) в стехиометрических кристаллах  $\text{LiNbO}_3$ . Доменные структуры формировались в двух типах кристаллов. Стехиометрический кристалл  $\text{LiNbO}_3$  первого типа (SLN) был выращен методом Чохральского из расплава, обогащенного  $\text{Li}_2\text{O}$  (~ 58.6 mol.%  $\text{Li}_2\text{O}$ ) [1]. Такие кристаллы из-за значительного различия в составах расплава и кристалла характеризуются сильно неоднородным показателем преломления вдоль оси роста и мало пригодны для практического применения. Второй кристалл был выращен из расплава конгруэнтного состава, содержащего добавку 6 wt.% щелочного растворителя (флюса) —  $\text{K}_2\text{O}$  [2]. Расплав в пересчете содержит почти 58 mol.% родственных щелочных компонентов (48.6 mol.%  $\text{Li}_2\text{O}$  + 9.3 mol.%  $\text{K}_2\text{O}$ ), что определяет его структуру и позволяет получать кристаллы  $\text{LiNbO}_3$  очень близкие по составу и свойствам к стехиометрическим (NSLN), но в то же время не уступающие по однородности конгруэнтным (CLN) [2,3]. По данным работы [4] NSLN является несколько более дефектным, чем SLN, и обладает пониженным фоторефрактивным эффектом по сравнению со SLN и CLN.

Для рисования РДС оптически полированные Z-срезы толщиной 0.75 mm, изготовленные из кристаллов SLN и NSLN, облучались в растровом электронном микроскопе с управляемым электронным лучом ( $E = 25 \text{ keV}$ ,  $I = 0.1\text{--}0.25 \text{ nA}$ ). Для создания однородного электрического поля на противоположную  $+z$ -поверхность напылялся Al, и образцы заземлялись. Локальные зоны облучения размерами  $S_{\text{ит}} = 1 \times 1$  и  $1.5 \times 1.5 \mu\text{m}$  выстраивались с интервалами в 1 или 1.5  $\mu\text{m}$  по линиям. Расстояния между линиями для разных структур менялись от 6.5 до 10  $\mu\text{m}$ . Периодические линии рисовались параллельно X- или Y-направлению на площади кристалла ~ 500 × 500  $\mu\text{m}^2$ . После этого образцы травились в течение ~ 60 s в растворе  $\text{HF} + 2\text{HNO}_3$  при нагреве. Затем РДС исследовались в оптическом микроскопе

марки Zeiss Axioplan 2 и в атомно-силовом микроскопе Nano-R2TM.

Пороговые величины заряда, необходимые для зарождения индивидуальных доменов, при 25 keV в SLN и NSLN несколько различались, но были близки:  $Q_{\text{NSLN}} \leq 1 \cdot 10^{-11} \text{ C}$  и  $Q_{\text{SLN}} \sim 1.2 \cdot 10^{-11} \text{ C}$ . В обоих кристаллах при пороговых и близких к ним величинах  $Q$  форма доменов была треугольной. Средний радиус треугольных доменов, определенный по их площади,  $r_d \sim 2.5 \mu\text{m}$  для SLN и ~ 4  $\mu\text{m}$  для NSLN. Несмотря на их различие, размеры области переключения для обоих кристаллов превышают размеры зон облучения, что связано, видимо, с дрейфом электронов в облучаемом участке [5]. В SLN при увеличении величины внедряемого заряда в отличие от NSLN [6] не было обнаружено постепенной трансформации треугольных зародышей к гексагональной форме. В SLN с ростом величины внедряемого заряда происходило только увеличение числа мелких треугольных зародышей, возникших в зоне облучения (рис. 1, *a, b*). Индивидуальные домены в SLN не дорастали до противоположной стороны при расстояниях между облучениями в 30, 20 и 10  $\mu\text{m}$ . В NSLN переход от 30  $\mu\text{m}$  интервала к интервалу в 20  $\mu\text{m}$  уже приводил к прорастанию значительной части доменов до противоположной  $+z$ -стороны образца толщиной 0.75 mm [6]. Обнаруженные различия в формировании индивидуальных доменов могут быть связаны как с различиями в составе кристаллов, так и с особенностями дефектных структур SLN и NSLN [4], влияющими на концентрацию электронных ловушек в зоне облучения и соответственно на электрическое поле, создаваемое захваченными на ловушки внедренными электронным лучом зарядами.

При формировании РДС интервалы между отдельными облучениями были сравнимы с размерами облучаемых участков кристалла. Такое более плотное распределение внедряемых зарядов привело к двукратному снижению пороговых доз зарождения доменов и

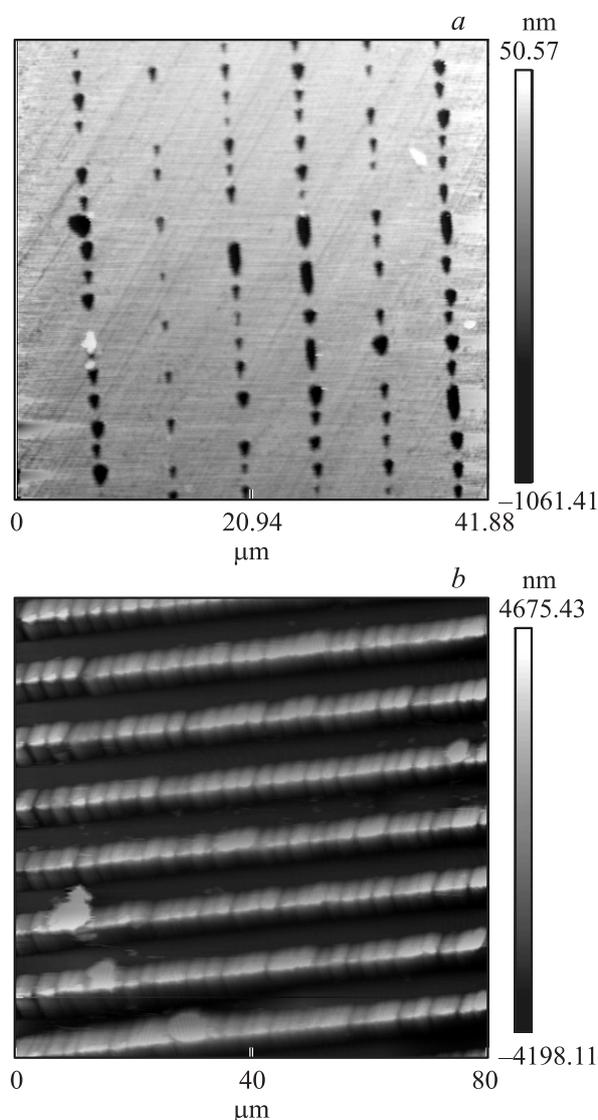


**Рис. 1.** Оптическое изображение переключенных электронным лучом участков кристалла на  $-z$ -стороне SLN при различных величинах заряда.  $Q = 12$  (a) и  $Q = 52$  pC (b).

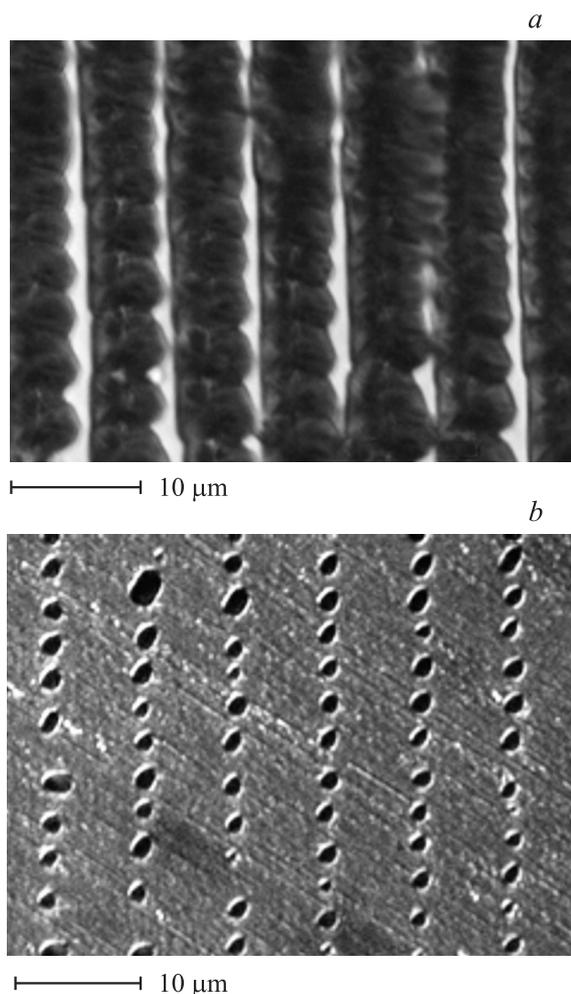
их успешному прорастанию до противоположной  $+z$ -стороны в обоих типах кристаллов. При формировании периодических доменных линий из слившихся треугольных доменов шириной  $4\text{--}5\ \mu\text{m}$  на облучаемой  $-z$ -стороне, до противоположной  $+z$ -стороны кристаллов SLN и NSLN дорастали отдельные треугольные домены рис. 2a,b. Подобный тип РДС структур, формируемый электронным лучом в объеме кристаллов, является, по-видимому, характерным для кристаллов  $\text{LiNbO}_3$  и  $\text{LiTaO}_3$  толщиной несколько сотен микрометров из-за небольшого наклона вертикальных доменных стенок относительно оси  $Z$  [7,8]. Следует отметить, что в отличие от исследованных нами стехиометрических кристаллов домены в CLN создаваемые электронным лучом, имели не треугольную, а гексагональную форму [8].

Важным фактором в формировании РДС является оптимальный подбор технологических параметров рисования электронным лучом. При недостаточной величине внедряемого заряда доменная линия, формируемая

последовательно соединенными треугольными доменами на облучаемой  $-z$ -стороне, может изменить направление. В результате доменные линии РДС могли быть извилистыми и прерывистыми. Избыток внедряемого заряда электронов приводит к чрезмерному латеральному разрастанию и даже слиянию соседних доменных линий. На ширину линий на облучаемой  $-z$ -стороне кристаллов также существенно влияет выбор кристаллографического направления рисования [7]. Более узкие линии при прочих равных технологических параметрах рисования получались при использовании  $Y$ -направлений. Напротив, рисование вдоль  $X$ -направления приводило к формированию доменных линий с разными доменными стенками: прямой и зигзагообразной. Зигзагообразная доменная граница особенно быстро перемещается в боковом направлении, приводя к избыточному латераль-



**Рис. 2.** АСМ-изображение двух РДС в NSLN после химического травления, рисование лучом вдоль  $Y$ -направления,  $Q = 5$  pC. a —  $+z$ -сторона, период  $6.5\ \mu\text{m}$ ; b —  $-z$ -сторона, период  $10\ \mu\text{m}$ .



**Рис. 3.** Оптическое изображение РДС в SLN после химического травления, рисование лучом вдоль  $X$  направления, период  $7\ \mu\text{m}$ ,  $Q = 5\ \text{pC}$ .  $a$  — облучаемая сторона ( $-z$ ),  $b$  — необлучаемая сторона ( $+z$ ).

ному расширению переключаемых лучом зон кристалла. Это почти не влияло на доменную структуру на противоположной стороне образца при условии использования оптимальных доз внедряемого заряда (рис. 3,  $a$ ,  $b$ ).

Несмотря на некоторые различия в формировании индивидуальных доменов, для обоих типов кристаллов (SLN и NSLN) толщиной в  $0.75\ \text{mm}$ , были найдены близкие оптимальные технологические условия для создания РДС с периодами в  $10$ ,  $7$  и  $6.5\ \mu\text{m}$ . Периодические доменные решетки, созданные при рисовании лучом по  $-z$ - стороне, на  $+z$ -стороне состояли из отдельных треугольных доменов.

## Список литературы

- [1] Ю.С. Кузьминов. Электрооптический и нелинейно-оптический кристалл ниобата лития. Наука, М. (1987). 264 с.
- [2] Р.Н. Баласаян, В.Т. Габриелян, Л.М. Казарян. Докл. НАН Армении. Физика **100**, 134 (2000).

- [3] G.I. Malovichko, V.G. Grachev, E.P. Kokanyan, O.F. Schirmer, K. Betzler, B. Gather, F. Jermann, S. Klauer, U. Schlarb, M. Wohlecke. Appl. Phys. A **56**, 103 (1993).
- [4] Н.В. Сидоров, М.Н. Палатников, В.Т. Габриелян, П.Г. Чуфырев, В.Т. Калинин. Неорган. материалы, **43**, 66 (2007).
- [5] Ф.А. Лукьянов, Э.И. Рау, Р.А. Сеннов. Изв. РАН. Сер. физ. **83**, 463 (2009).
- [6] L.S. Kokhanchik, M.N. Palatnikov, O.B. Shcherbina. Phase Trans. **84** (9–10), 797 (2011).
- [7] Л.С. Коханчик, Д.В. Иржак. ФТТ **52**, 285 (2010).
- [8] J. He, S.H. Tang, Y.Q. Qin, P. Dong, H.Z. Zhang, C.H. Kang, W.X. Sun, Z.X. Shen, J. Appl. Phys. **93**, 9943 (2003).