

УДК 621.373

## ИССЛЕДОВАНИЕ ПАРАМЕТРОВ ФОРМИРОВАНИЯ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ В ГРАДИЕНТНОМ НИОБАТЕ ЛИТИЯ

Галуцкий В. В., Строганова Е. В., Шмаргилов С. А., Цема А. А., Яковенко Н. А.

### THE RESEARCH OF PARAMETERS OF FORMATION OF DOMAIN STRUCTURE IN LITHIUM NIOBATE WITH GRADIENT OF CONCENTRATION

Galutskiy V. V., Stroganova E. V., Shmargilov S. A., Tsema A. A., Yakovenko N. A.

Kuban State University, Krasnodar, 350040, Russia  
e-mail: stroganova@phys.kubsu.ru

*Abstract.* For the experimental research of process of formation of domain structure in lithium niobate with gradient of concentration the focused crystal plate of 0.4 mm (a so-called z-cut, i.e. the allocated axis of the crystal is perpendicular plate planes) has been used in the thickness. Put during crystal pulling up time the gradient of structure of the plate of lithium niobate along an axis x was close to linear and changed at level of 2 % (from  $R = 0.94$  to  $0.96$ ).

Crystal repolarization was made by the appendix to a thin plate of a high voltage. Peak value made 7 kV. Reflection of domain formation processes in electric field time change of values of the field necessary for repolarization is. From experimental data, follows that formation of domain structure in the crystal lithium niobate with gradient of concentration occurs practically at one value of the polarizing pressure brought to a crystal plate. And, the current starts to proceed through a plate at excess of level of pressure 6.5 kV that makes 16.5 kV/mm. Certainly, the given value is the integrated parameter characterizing all plate of lithium niobate entirely. However the strongly pronounced beginning of formation of domains testifies, as well as it was supposed about insignificance of influence of a gradient of structure of a plate in the borders specified above under condition of replacement of defects “niobium in lithium site” ions non-photorefractive impurity.

*Keywords:* lithium niobate, regular domain structure, polarization

Исследование и получение компактных преобразователей оптического диапазона на основе нелинейно-оптического эффекта является актуальной задачей современных телекоммуникаций. Одним из базовых материалов для оптоэлектронных и фотонных устройств выступает ниобат лития, в особенности для устройств, работающих на эффекте квазисинхронизма, так называемых регулярных доменных структур (РДС) структуры или PPLN [1]. В настоящее время известно, что один из недостатков PPLN — слабую рефракционную стойкость можно устранить путем легирования ниобата лития ионами магния, цинка, скандия и др. [2]. Одним из важ-

ных факторов, позволяющим повысить эффективность использования PPLN как преобразователя оптического излучения, является создание условий градиента вектора волновой расстройки. Данного эффекта можно достигнуть, либо методом модулирования периода следования доменов [3], либо методом выращивания кристалла с заданным градиентным распределением примеси по длине [4, 5].

При реализации первого метода необходимо учитывать, что скорость формирования доменных стенок в PPLN одинакова по всей длине пластины, но могут существовать ограничения, связанные со срастанием близкорасположенных узких доменов. Для устра-

Галуцкий Валерий Викторович, канд. физ.-мат. наук, доцент кафедры оптоэлектроники Кубанского государственного университета; e-mail: galutskiy17v@mail.ru

Строганова Елена Валерьевна, канд. физ.-мат. наук, доцент кафедры оптоэлектроники Кубанского государственного университета; e-mail: stroganova@phys.kubsu.ru

Шмаргилов Сергей Андреевич, аспирант кафедры оптоэлектроники Кубанского государственного университета; e-mail: shmargilov.s.a@gmail.com

Цема Александр Алексеевич, аспирант кафедры оптоэлектроники Кубанского государственного университета; e-mail: saimon\_na\_war@mail.ru

Яковенко Николай Андреевич, д-р тех.н., профессор, зав.кафедрой оптоэлектроники Кубанского государственного университета; e-mail: dean@phys.kubsu.ru

Работа выполнена при поддержке проекта 2014/75 НИР № 1291.

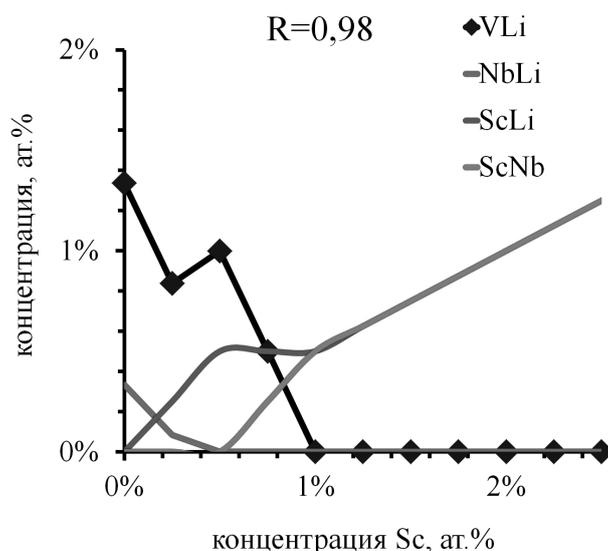


Рис. 1. Доля дефектов в ниобате лития в зависимости от концентрации скандия

нения указанного ограничения при создании доменов с градиентом вектора волновой расстройки используется определенный фотошаблон [3]. При реализации второго метода создается определенный градиент по составу (неоднородность по составу) компонент матрицы ниобата лития при росте кристалла [4]. В этом случае может оказаться, что на регулярность доменной структуры будет влиять неоднородность коэрцитивного поля по длине пластины [1, 2].

Для исследования степени влияния неоднородности концентрации на формирование доменной структуры в ниобате лития рассмотрим дефектную модель ниобата лития (рис. 1).

Смена ориентации домена в пластине ниобата лития связана с переходом атомов ниобия и лития через потенциальный барьер, образованный кислородными плоскостями. Очевидно, что величина коэрцитивного поля зависит от состава кристаллической пластины и варьируется в пределах от 1–24 кВ/см [3]. Если учесть, что для снижения влияния фоторефракции ниобат лития легируют ионами магния, цинка, скандия и др., то дополнительные дефекты в кристалле могут также оказывать влияние на изменение величины коэрцитивного поля. На рис. 1 представлена диаграмма формирования дефектов в кристаллах ниобата лития: литиевые вакансии, вакансии «ниобий в позиции лития», «скандий в позиции лития» и «скандий в позиции

ниобия». Видно, что, начиная с концентрации порядка 1 мол. %, при отношении ионов лития к ионам ниобия  $R = 0,98$  происходит полное вытеснение литиевых вакансий, дефекты вида «ниобий в позиции лития» вытесняются в этом случае еще при более низкой концентрации скандия (рис. 1). Подобная дефектная модель может быть применена и для других нефоторефрактивных ионов. Наиболее существенный вклад в снижение величины коэрцитивного поля может оказывать процесс вытеснения дефектов вида «ниобий в литиевой позиции» ионами магния, цинка, скандия [2]. В этом случае влияние градиента по составу кристаллической пластины на градиент вектора волновой расстройки (градиент оптических свойств PPLN) при переориентации доменов внешним электрическим полем может оказаться не определяющим фактором для формируемой доменной структуры.

Для экспериментальной проверки этого утверждения на основе уравнений Лапласа [3] в среде PDETool была визуализирована модель, учитывающая с помощью уравнений Сельмеера [5] градиент распределения показателя преломления, а значит, и диэлектрическую проницаемость по длине пластины (рис. 2). Из рис. 2 видно, что влияние градиента диэлектрической проницаемости, а следовательно и вектора волновой расстройки, на распределение потенциала коэрцитивного поля внутри кристаллической пластины является незначительным. В данном случае

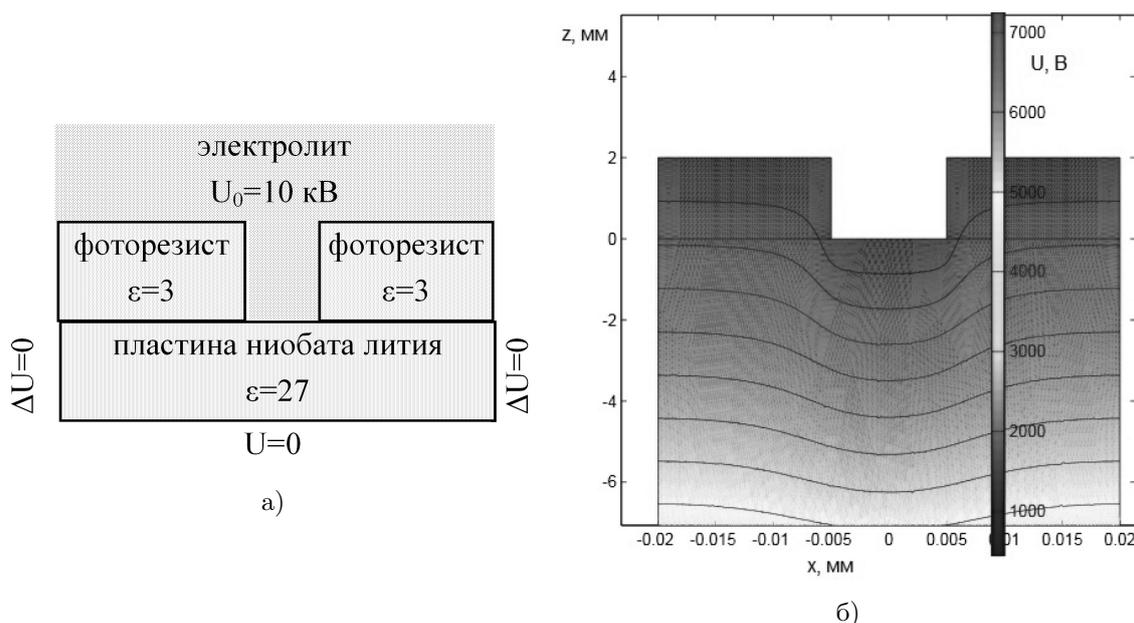


Рис. 2. Схема процесса переполаризации (а) и распределение внешнего электрического поля в пластине ниобата лития и фоторезисте (по осям мм, величина потенциала внешнего поля в вольтах) (б)

рассмотрен градиент по составу кристалла на уровне 5 % от оптимального состава для нулевой волновой расстройки при периоде доменной структуры 5–10 мкм. С учетом предполагаемого снижения зависимости величины коэрцитивного поля от состава пластины ниобата лития при вытеснении ионами нефоторефрактивных примесей дефектов «ниобий в позиции лития» данная картина распределения потенциала внешнего электрического поля не является лимитирующей в процессе формирования регулярной доменной структуры.

Для экспериментального подтверждения гипотезы была использована ориентированная пластина градиентного по составу ниобата лития толщиной 0,4 мм (так называемый  $z$ -срез, т.е. выделенная ось кристалла перпендикулярна плоскости пластины). Изменение по составу кристаллической пластины ниобата лития реализовалось по оси  $x$ . Функция градиента по составу пластины была близка к линейной и изменялась на уровне 2 % (от  $R = 0,94$  до  $0,96$ ).

Процедура создания структуры PPLN проходила в несколько этапов. Первый этап — нанесение фоторезиста на пластину ниобата лития. Использовался фоторезист ФП-383, предназначенный для фотолитографических процессов в производстве полупроводниковых

приборов и интегральных схем, металлизированных шаблонов, шкал, сеток, печатных плат. Разрешающая способность фоторезиста составляет 500 штрихов/нм. Для распределения фоторезиста на пластине тонким слоем использовалась центрифуга spin process controller со скоростью вращения 4000 оборотов в минуту. Толщина полученной пленки фоторезиста составляет примерно 1 мкм. Для адгезии полученный образец помещали в термошкаф с температурой 92°C на 10 мин. Проявление фоторезиста производилось при помощи ртутно-кварцевой лампы ДРШ-250 мощностью 250 Вт в течении 3 мин. Экспонирование производилось в ультрафиолетовом диапазоне спектра. Разрушение полимера осуществляли путем накладывания шаблона решетки с периодом 5 мкм на полученный образец и воздействовали ультрафиолетовым излучением лампы. Как видно из рис. 3, полученная решетка практически не имеет дефектов, что удовлетворяет требованиям данного этапа эксперимента, поскольку неоднородности образца коренным образом влияют на результат получения PPLN.

Второй этап — переполаризация доменов. Переполаризация возникает при смещении ионов из одного нецентросимметричного положения вдоль оси спонтанной поляризации в другое нецентросимметричное положение.

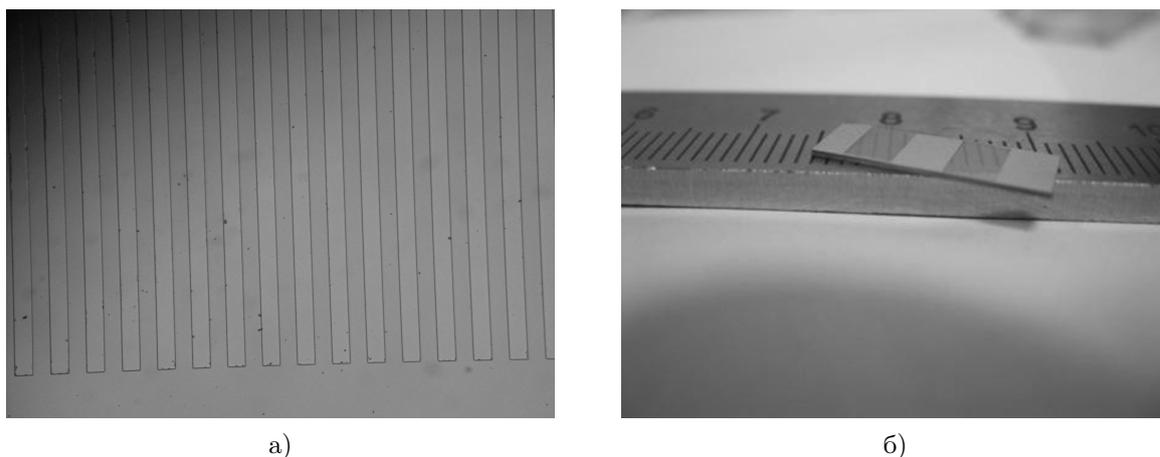


Рис. 3. Заготовки для PPLN покрытая фоторезистом (а) и двухпериодная с алюминиевым напылением (б)

Все известные методы переполаризации можно разделить на две группы: использующие внешние электрические поля и использующие градиенты внутренних электрических полей. В данной работе был применен первый метод переполаризации. В реальных кристаллах процесс переполаризации протекает путем зарождения и разрастания в объеме кристалла областей с благоприятным по отношению к полю направлением поляризации. Переполаризация сегнетоэлектрика осуществляется за счет двух механизмов: зарождения зародышей противоположной ориентации и роста зародышей. Периодическая переполаризация сегнетоэлектрика при этом также приводит к случайным скачкообразным изменениям вектора поляризации, следовательно — к сплошному спектру тока в цепи, связанного с сегнетоэлектрическим конденсатором. Интенсивность шума сильно зависит от амплитуды и частоты переполаризирующего напряжения, а также от температуры. Уровень шума возрастает при приближении температуры к точке Кюри.

Для проведения второго этапа эксперимента был использован стенд, представленный на рис. 4 и состоящий из генератора импульсов AFG 3011C, высоковольтного усилителя AMP-20B20 и цифрового осциллографа TPS 2012B.

На начальном этапе формировался входной импульс, форма которого показана на рис. 5. Формирование формы импульса производилось по следующим принципам. На первом этапе плавно увеличивалось напряжение до предельно допустимого. Это необходимо

для того, чтобы тестируемый образец не повредился от резкого скачка высоковольтного напряжения. Далее напряжение начального импульса резко увеличивалось на величину порядка 0,6–1 В на короткий промежуток времени для осуществления процесса переполаризации кристалла. На последнем этапе напряжение плавно уменьшается для того, чтобы не допустить возвращения переполаризованных доменов в исходную форму.

Представленная на рис. 5 форма импульса является наиболее приемлемой по ряду причин: во-первых, сводится к минимуму нагрузка проходящего высокого напряжения на образец, тем самым снижается риск повреждения тонкой пластины; во-вторых, высоковольтный усилитель в силу своей конструкции имеет высокую емкость конденсаторов, которая не позволяет реагировать на резкие изменения уровня напряжения.

Усиленный сигнал поступает на герметичную камеру, в которой находится образец. Составные компоненты герметичной камеры и их параметры должны обеспечивать условия проводимости, и отсутствия агрессивного воздействия со стороны электролита на чувствительную решетку фоторезиста. Герметичность камеры необходима для предотвращения короткого замыкания и электрического пробоя.

Переполаризация кристалла производилась путем приложения к тонкой пластине высокого напряжения. Амплитудное значение составляло порядка 7 кВ. Экспериментальным подтверждением процессов доменообразования в электрическом поле является скач-

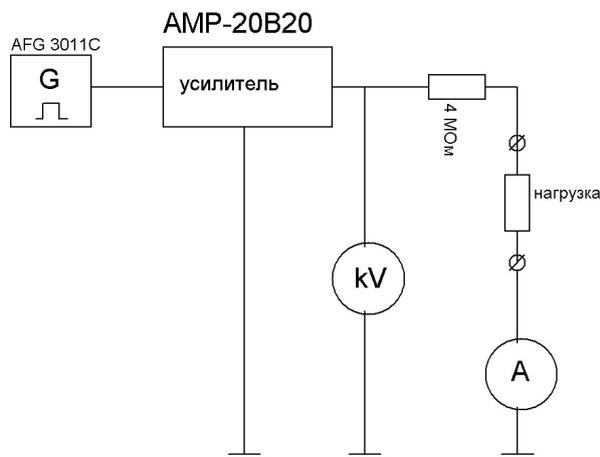


Рис. 4. Схема приложения коэрцитивного поля к нагрузке (пластине ниобата лития)

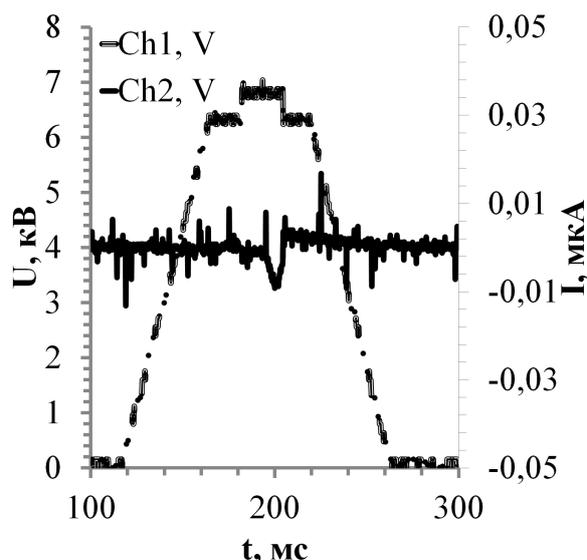


Рис. 5. Импульс приложения внешнего электрического поля

кообразное изменение значений тока, необходимого для переполяризации. На рис. 5, представлена зависимость протекания электрического тока через пластину ниобата лития от времени приложения поля. Вид графика изменения электрического тока на рис. 5 свидетельствует о формировании доменной структуры. Как и предполагалось, ток начинает протекать через пластину только с момента превышения некоторого уровня напряжения (6,5 кВ), что составляет 16,5 кВ/мм в расчете на единицу толщины пластины. Конечно, данное значение является интегральным параметром, характеризующим всю пластину ниобата лития целиком. Однако процесс формирования доменов (рис. 5) свидетельствует о том, что влияние градиента по составу пластины в границах  $R = 0,94 \div 0,96$  в рамках условий вытеснения дефектов «ниобий в литиевой позиции» ионами нефоторефрактивных примесей не является определяющим и влияет на процесс формирования домен незначительно.

Таким образом, анализ формы импульсов переполяризации и электрического тока, протекающего при формировании доменов, показал, что при условии вытеснения дефектов «ниобий в литиевой позиции» ионами нефоторефрактивных примесей можно добиться градиента вектора волновой расстройки в пластинах PPLN путем их изготовления из градиентных кристаллов ниобата лития.

## Литература

1. Wang Jian, Fu Hongyan, Geng Dongyu, Willner Alan E. Single-PPLN-assisted wavelength-/time-selective switching/dropping/swapping for 100-GHzspaced WDM signals // *Optics Express*. 2013. Vol. 21. № 3. P. 3756–3774.
2. Сидоров Н.В., Волж Т.Р., Маврин Б.Н., Калинин В.Т. Ниобат лития: дефекты, фоторефракция, колебательный спектр, поляритоны. М.: Наука, 2003. 250 с.
3. Johnston Benjamin F. Fabrication and characterisation of poled ferroelectric optical crystals Macquarie University: Thesis for the degree of Doctor of Philosophy, 2008, 236 p.
4. Galutskiy V.V., Vatlina M.I., Stroganov E.V. Growth of single crystal with a gradient of concentration of impurities by the Czochralski method using additional liquid charging // *Journal of Crystal Growth*. 2009. № 311. P. 1190–1194.
5. Galutskiy V.V., Stroganov E.V., Shmargilov S.A., Yakovenko N.A. Frequency conversion in compositionally graded PPLN crystals // *Quantum Electronics*. 2014. №44 (1). P. 30–33.

## References

1. Wang Jian, Fu Hongyan, Geng Dongyu, Willner Alan E. Single-PPLN-assisted wavelength-/time-selective switching/dropping/swapping for 100-GHzspaced WDM signals. *Optics Express*, 2013, vol. 21, no.3, pp. 3756–3774.
2. Sidorov N.V., Volk T.R., Mavrin B.N., Kalinikov V.T. *Niobat litiya: defecti, fotorefrakciya, kolebatelniy spektr, polyaritoni* [Niobate of lithium: defects, photorefractive, vibration spec-

- trum, polaritons]. Moscow, Nauka Publ., 2003, 250 p.
3. Johnston Benjamin F. *Fabrication and characterisation of poled ferroelectric optical crystals*. Macquarie University: Thesis for the degree of Doctor of Philosophy, 2008, 236 p.
  4. Galutskiy V.V., Vatlina M.I., Stroganova E.V. Growth of single crystal with a gradient of concentration of impurities by the Czochralski method using additional liquid charging. *Journal of Crystal Growth*, 2009, vol. 311, pp. 1190–1194.
  5. Galutskiy V.V., Stroganova E.V., Shmargilov S.A., Yakovenko N.A. Frequency conversion in compositionally graded PPLN crystals. *Quantum Electronics*, 2014, vol. 44 (1), pp. 30–33.

---

Статья поступила 26 октября 2015 г.

© Галуцкий В. В., Строганова Е. В., Шмаргилов С. А., Цема А. А., Яковенко Н. А., 2015