

2. Geller, S. Crystal chemistry of the garnets / S. Geller // Z. Kristallographic. – 1967. – V. 125. – N 1–6. – P. 1–47.
3. Зими́на, Г. В. Синтез и исследование алюмоиттриевых гранатов, легированных неодимом и иттербием / Г. В. Зими́на, А. В. Новоселов, И. Н. Смирнова, Ф. М. Спиридонов, Г. Я. Пушкина, Л. Н. Комиссарова // Журн. неорган. химии. – 2010. – Т. 55, № 12. – С. 1945–1948.
4. Манаширов, О. Я. Синтез и исследование ИК-люминесценции твердых растворов $(Y_{1-x}Yb_x)_2O_3$ при лазерном возбуждении / О. Я. Манаширов, В. А. Воробьев, Б. М. Синельников, Е. М. Зверева // Вестн. СевКавГТУ. – 2011. – № 8. – С. 14–24.
5. Чу́гунова, М. М. Люминесцентные свойства прозрачных керамик $Y_3Al_5O_{12} : Yb$ / М. М. Чу́гунова, И. А. Каменских, В. В. Михайлин, С. А. Усенко // Оптика и спектроскопия. – 2010. – Т. 109, № 6. – С. 925–957.
6. Esmailzadeh, M. Experimental study on temperature dependence of absorption and emission properties of Yb : YAG crystal as a disk laser medium / M. Esmailzadeh, H. Roohbakhsh, A. Ghaedzadeh // World Acad. of Sci., Eng. and Technol. – 2012. – V. –63. – P. 436–439.
7. Schmitt, R. L. Design and performance of a high-repetition-rate single-frequency Yb : YAG microlaser / R. L. Schmitt, Binh T. Do // Proc. of SPIE. – 2008. – V. 6871. – P. 39–48
8. Niklas, A. Disclosure of defects in YAG crystals by the thermoluminescence method / A. Niklas // Appl. Phys. – 1984. – V. 35. – P. 249–253
9. Taira, T. Modeling of quasi-three-level lasers and operation of cw Yb : YAG lasers / T. Taira, W. M. Tulloch, R. L. Byer // Appl. Optics. – 1997. – V. 36, N 9. – P. 1867–1874
10. van Pieterse, L. Charge transfer luminescence of Yb³⁺ / L. van Pieterse, M. Heeroma, E. de Heer, A. Meijerink // J. of Luminescence. – 2000. – V. 91. – P. 177–193.
11. Laversenne, L. Optimization of spectroscopic properties of Yb³⁺-doped refractory sesquioxides: cubic Y₂O₃, Lu₂O₃ and monoclinic Gd₂O₃ / L. Laversenne, Y. Guyot, C. Coutaudier // Optical Mater. – 2001. – V. 16. – P. 475–483.
12. Dexter, D. L. A theory of sensitized luminescence in solids / D. L. Dexter // J. Chem. Phys. – 1953. – V. 21, N 5. – P. 836–850.
13. Dexter, D. L. Theory of concentration quenching in inorganic phosphors / D. L. Dexter, L. Shulman // J. Chem. Phys. – 1954. – V. 22, N 6. – P. 1064–1070.
14. Полуэктов, Н. С. Определение микроколичеств лантаноидов по люминесценции кристаллофосфоров / Н. С. Полуэктов, Н. П. Ефрюшина, С. А. Гава. – Киев : Наукова думка, 1976. – 212 с.
15. Boulon, G. Why so deep research on Yb³⁺-doped optical inorganic materials? / G. Boulon // J. Alloys and Compounds. – 2008. – V. 452. – P. 1–11.
16. Yoshikawa, A. Growth and spectroscopic analysis of Yb³⁺-doped Y₃Al₅O₁₂ fiber single crystals / A. Yoshikawa, G. Boulon, L. Laversenne // J. Appl. Phys. – 2003. – V. 94. – P. 5479–5488.
17. Bensalah, A. Spectroscopic properties of Yb³⁺ : LuLiF₄ crystal growth by the Gzochralski method for laser applications and evaluation of quenching processes: a comparison with Yb³⁺ : LuLiF₄ / A. Bensalah, Y. Guyot, A. Brenier // J. Alloys and Compounds. – 2004. – V. 380. – P. 15–26.
18. Zhang, L. Evaluation of spectroscopic properties of Yb³⁺ in tetraphosphate glass / L. Zhang, H. Hu // J. Non-Cryst. Solids. – 2001. – V. 292. – P. 108–114.
19. Boulon, G. Radiative and non-radiative energy transfers in Yb³⁺-doped sesquioxide and garnet laser crystals from combinatorial approach based on gradient concentration fibers / G. Boulon, L. Laversenne, C. Goutaudier // J. Luminescence. – 2003. – V. 102–103. – P. 417–425.
20. DeLoach, L. D. Evaluation of absorption and emission properties of Yb³⁺ doped crystals for laser applications / L. D. DeLoach, S. A. Payne, L. L. Chase // IEEE J. Quantum Electronics. – 1993. – V. 29, N 4. – P. 1179–1191.

УДК 537.2:547.7

ФОРМИРОВАНИЕ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ДОМЕННЫХ СТРУКТУР В КРИСТАЛЛАХ LiTaO₃ МЕТОДОМ ПРЯМОЙ ЭЛЕКТРОННО-ЛУЧЕВОЙ ПЕРЕПОЛЯРИЗАЦИИ

© 2012 г. Д. В. Рощупкин, Е. В. Емелин, О. А. Бузанов*

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов Российской академии наук, *ОАО «Фомос-Материалс»

Исследован процесс переполаризации сегнетоэлектрического кристалла LiTaO₃ методом прямой электронно-лучевой литографии. Продемонстрирована возможность формирования доменной структуры с шириной доменов ~1 мкм. Показано, что в 127° Y-срезе кристалла LiTaO₃ сегнетоэлектрические домены формируются под углом 37° к поверхности кристалла и растут от отрицательной поверхности к положительной вдоль поляриной оси Z.

Ключевые слова: сегнетоэлектрический кристалл LiTaO₃, электронно-лучевая литография.

Введение

Возможность формирования доменных структур в сегнетоэлектрических кристаллах LiNbO₃ и LiTaO₃ играет большое значение для развития опто- и акустоэлектроники. В оптоэлектронике доменные структуры применяют для удвоения частоты оптического излучения и в качестве оптических дифракционных решеток [1–3], а в акустоэлектронике доменные структуры являются эффективным устройством для генерации

поверхностных и объемных акустических волн [4–7].

Для формирования доменных структур сегодня можно использовать как ростовые [8–10], так и послеростовые методы [11–14]. Наибольший интерес представляют послеростовые методы формирования доменных структур, с помощью которых, используя методы прямой электронно-лучевой переполаризации или атомно-силовой микроскопии, можно формировать доменные структуры с шириной доменов менее 1 мкм.

Ниже рассмотрены вопросы формирования доменной структуры в $127^\circ Y'$ -срезе кристалла $LiTaO_3$ с использованием метода прямой электронно-лучевой переполаризации. Использование метода электронно-лучевой литографии потенциально позволяет формировать в кристаллах большие массивы доменных структур с размерами доменов от нескольких микрометров до нескольких нанометров. Формирование наноразмерных доменных структур позволит расширить их применение в акусто- и оптоэлектронике, в области создания элементов памяти.

Результаты и их обсуждение

На рис. 1 схематично представлен процесс электронно-лучевой переполаризации $127^\circ Y'$ -среза кристалла $LiTaO_3$. Для исследований использовали образцы толщиной 300 мкм. Образцы были отполированы с двух сторон. Шероховатость поверхности образцов не превышала 0,8 нм. В $127^\circ Y'$ -срезе кристалла $LiTaO_3$ полярная ось Z составляет 37° с поверхностью подложки. Процесс электронно-лучевой переполаризации осуществляется на $-Z'$ поверхности подложки. На положительную поверх-

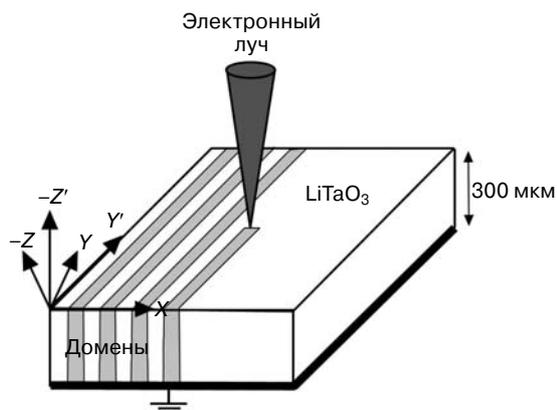


Рис. 1. Процесс электронно-лучевой переполаризации $127^\circ Y'$ -среза кристалла $LiTaO_3$

ность подложки был напылен тонкий слой алюминия толщиной 60 нм и эта поверхность была заземлена. Особенностью процесса электронно-лучевой переполаризации кристалла $LiTaO_3$ является то, что доменная структура прорастает от отрицательной поверхности к положительной, и процесс переполаризации является контролируемым. В кристаллах $LiNbO_3$ процесс переполаризации осуществляется также путем электронно-лучевой литографии на отрицательной поверхности подложки, а процесс переполаризации начинается с положительной поверхности и идет к отрицательной, т. е. процесс переполаризации начинается с противоположной стороны образца.

Процесс переполаризации $127^\circ Y'$ -среза кристалла $LiTaO_3$ был выполнен на установке Zeiss EVO50 при ускоряющем напряжении электронного зонда

$E = 12$ кВ и токе первичного электронного зонда $I = 1$ пА. На рис. 2 приведены микрофотографии доменной структуры, сформированной методом прямой электронно-лучевой переполаризации. Ширина доменов составляет 1 мкм, общая площадь переполаризации на поверхности подложки — 400×400 мкм². Для визуализации доменной структуры использовали метод селективного химического травления в смеси кислот $Hf : HNO_3$, так как соседние домены имеют разные скорости травления вдоль положительных и отрицательных направлений полярных осей Z и Y . На $-Z'$ -поверхности, на которой осуществляется процесс электронно-лучевой литографии, в процессе травления формируются пирамидки травления (см. рис. 2, а). На рис. 2, б хорошо видны $-Z'$ - и $+Z'$ -поверхности подложки (оптический микроскоп

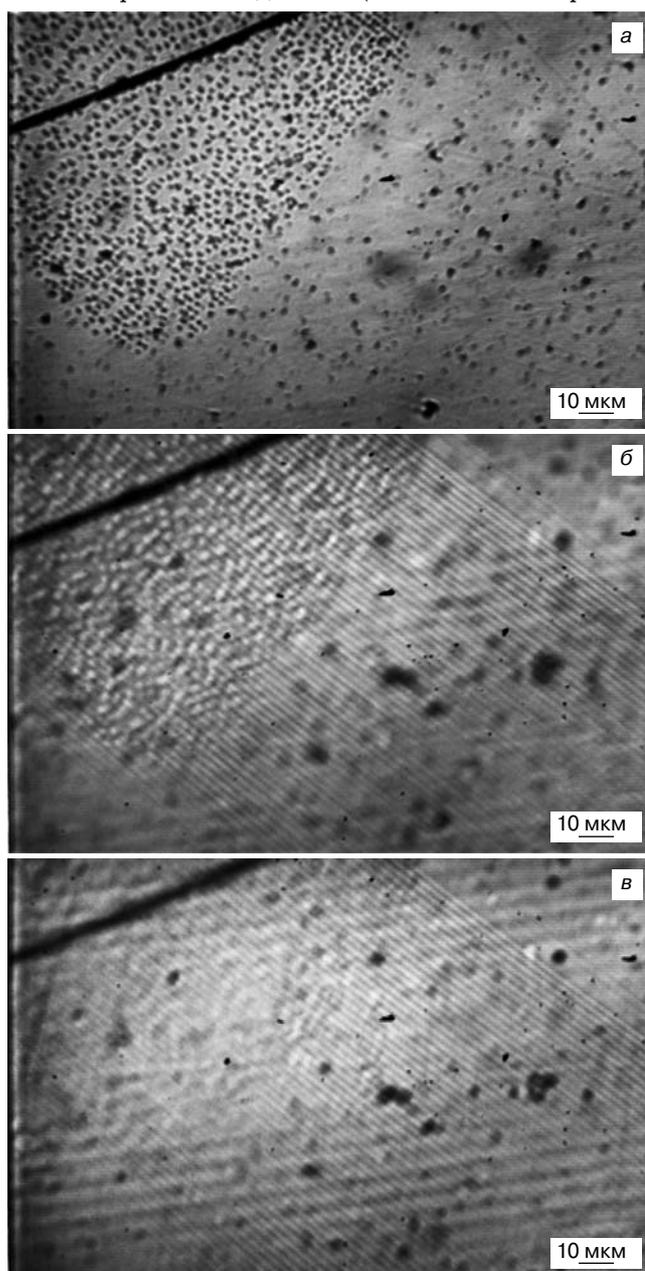


Рис. 2. Доменная структура с шириной доменов 1 мкм: а — изображение $-Z'$ -поверхности; б — $-Z'$ - и $+Z'$ -поверхностей; в — $+Z'$ -поверхности

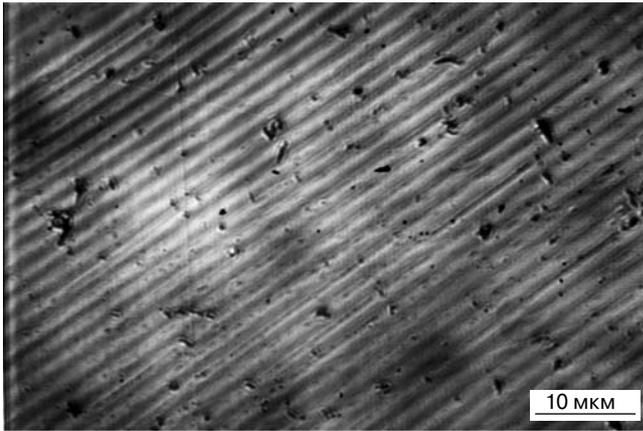


Рис. 3. Изображение $+Z'$ -поверхности кристалла LiTaO_3 при более высоком увеличении

настроен на объем образца). Причем изображения доменных структур на двух поверхностях смещены друг относительно друга. Это означает, что доменная структура растет не по нормали к поверхности подложки, а вдоль полярной оси Z под углом 37° к поверхности кристалла. Так как процесс рисования осуществлялся на поверхности подложки вдоль оси Y' , то и смещение доменной структуры происходило строго вдоль оси Y' . На рис. 2, в приведено изображение $+Z'$ -поверхности подложки, на которой доменная структура выявлена в виде строго периодических канавок, период которых составляет 2 мкм при ширине домена 1 мкм.

На рис. 3 представлено изображение $+Z'$ -поверхности подложки кристалла LiTaO_3 при более высоком увеличении.

Заключение

Продемонстрирована возможность формирования 180° -сегнетоэлектрических доменных структур в кристаллах LiTaO_3 методом прямой электронно-лучевой переполаризации. Показано, что метод электронно-лучевой литографии позволяет формировать большие массивы 180° -сегнетоэлектрических доменов с шириной доменов ~ 1 мкм.

Исследования по формированию 180° -сегнетоэлектрических доменных структур в кристаллах LiTaO_3 проведены в рамках ГК 16.513.12.3002.

Библиографический список

1. Ito, H. Fabrication of periodic domain grating in LiNbO_3 by electron beam writing for application of nonlinear optical processes / H. Ito, C. Takyu, H. Inaba // *Electron. Lett.* – 1991. – V. 27. – P. 1221–1226.
2. Fujimura, M. Quasi-phase-matched self-frequency doubling waveguide laser in Nd : LiNbO_3 / M. Fujimura, T. Kodama, T. Suhara, H. Nishihara // *IEEE Photon. Tech. Lett.* – 2000. – V. 12. – P. 1513–1515.
3. Sasaki, Y. Terahertz-wave surface-emitted difference frequency generation in slant-stripe-type periodically poled LiNbO_3 crystal / Y. Sasaki, Yu. Avetisyan, K. Kawase, H. Ito // *Appl. Phys. Lett.* – 2002. – V. 81. – P. 3323–3325.
4. Roshchupkin, D. V. Scanning electron microscopy observation of excitation of the surface acoustic waves by the regular domain structures in the LiNbO_3 crystals / D. V. Roshchupkin, T. Fournier, M. Brunel, O. A. Plotitsyna, N. G. Sorokin // *Ibid.* – 1993. – V. 60. – P. 23303–23304.
5. Roshchupkin, D. V. Reflection of surface acoustic waves on domain walls in a LiNbO_3 crystal / D. V. Roshchupkin, M. Brunel, R. Tucoulou, E. Bigler, N. G. Sorokin // *Ibid.* – 1994. – V. 64. – P. 164–165.
6. Cheng, S. Growth and transducer properties of an acoustic superlattice with its periods varying gradually / S. Cheng, Y. Zhu, Y. Lu, N. Ming // *Ibid.* – 1995. – V. 66. – P. 291–292.
7. Wan, Z. Fabrication of acoustic superlattice LiNbO_3 by pulsed current induction and its application for crossed field ultrasonic excitation / Z. Wan, Q. Wang, Y. Xi, Y. Lu, Y. Zhu, N. Ming // *Ibid.* – 2000. – V. 77. – P. 1891–1892.
8. Ishigame, Y. LiNbO_3 waveguide second-harmonic-generation device phase matched with a fan-out domain-inverted grating / Y. Ishigame, T. Suhara, H. Nishihara // *Opt. Lett.* – 1991. – V. 16. – P. 375–377.
9. Yamamoto, K. Characteristics of periodically domain-inverted LiNbO_3 and LiTaO_3 waveguides for second harmonic generation / K. Yamamoto, K. Mizuuchi, T. Takeshige, Y. Sasai, T. Taniuchi // *J. Appl. Phys.* – 1991. – V. 70. – P. 1947–1951.
10. Bermudez, V. Bulk periodic poled lithium niobate crystals doped with Er and Yb / V. Bermudez, M. D. Serrano, E. Dieguez // *J. Cryst. Growth.* – 1999. – V. 200. – P. 185–190.
11. Gupta, M. C. Second-harmonic generation in bulk and waveguided LiTaO_3 with domain inversion induced by electron beam scanning / M. C. Gupta, W. Kozlovsky, A. C. G. Nutt // *Appl. Phys. Lett.* – 1994. – V. 64. – P. 3210–3212.
12. Rosenman, G. Submicron ferroelectric domain structures tailored by high-voltage scanning probe microscopy / G. Rosenman, P. Urenski, A. Agronin, Y. Rosenwaks, M. Molotskii // *Ibid.* – 2003. – V. 82. – P. 103–105.
13. Terabe, K. Microscale to nanoscale ferroelectric domain and surface engineering of a near-stoichiometric LiNbO_3 crystal / K. Terabe, M. Nakamura, S. Takekawa, K. Kitamura, S. Higuchi, Y. Gotoh, Y. Cho // *Ibid.* – 2003. – V. 82. – P. 433–435.
14. Yamada, M. First-order quasi-phase matched LiNbO_3 waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation / M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, K. Watanabe // *Ibid.* – 1993. – V. 62. – P. 435–436.

* * *