

doi: 10.17586/2226-1494-2021-21-3-361-373

УДК 537.226, 539.22

Исследование пироэлектрического спонтанного переключения доменов в межэлектродном зазоре фазового модулятора на основе титан-диффузионных волноводов в кристаллах ниобата лития

Станислав Михайлович Аксарин¹✉, Алена Викторовна Смирнова²,
 Владимир Андреевич Шулепов³, Петр Сергеевич Парфенов⁴,
 Владимир Евгеньевич Стригалев⁵, Игорь Касьянович Мешковский⁶

^{1,2,3,4,5,6} Университет ИТМО, Санкт-Петербург, 197101, Российская Федерация

¹ staksar@gmail.com✉, <http://orcid.org/0000-0002-7482-3072>

² 79213040490@ya.ru, <http://orcid.org/0000-0001-6898-3400>

³ shulepov_vladimir@mail.ru, <http://orcid.org/0000-0003-2168-8046>

⁴ psparfenov@itmo.ru, <http://orcid.org/0000-0002-5983-841X>

⁵ vestrigalev@itmo.ru, <http://orcid.org/0000-0002-7151-9235>

⁶ igorkm@itmo.ru, <http://orcid.org/0000-0003-3470-1000>

Аннотация

Предмет исследования. Выполнен анализ кинетики зародышеобразования и роста доменов обратного знака в поверхностном слое монокристалла ниобата лития X -среза в межэлектродном зазоре интегрально-оптических фазовых модуляторов. Предложена и экспериментально обоснована модель морфологии роста доменов вдоль границ поверхностных электродов на модуляторах X -среза. Теоретически разъяснен механизм спонтанного роста игольчатых доменов вследствие возникновения электрического поля под действием пироэлектрического эффекта при изменении температуры кристалла. **Методика эксперимента.** Численная оценка вклада пироэлектрического поля в межэлектродном зазоре осуществлена в программном пакете Comsol Multiphysics. Экспериментальное изучение морфологии игольчатых доменов выполнено на серийных образцах интегрально-оптических фазовых модуляторов на основе волноводов Ti:LiNbO_3 . Для оценки формы и размеров доменов применено анизотропное травление в водном растворе плавиковой кислоты с последующим визуальным анализом. Для неразрушающего контроля использованы методы сканирующей электронной микроскопии и атомно-силовой микроскопии в контактном режиме измерения сигнала пьезоотклика. **Основные результаты.** Впервые экспериментально изучена морфология игольчатых доменов, возникающих в межэлектродном зазоре фазовых модуляторов на основе ниобата лития. Представлена теоретическая и численная модель роста доменов, учитывающая пироэлектрическую природу возбуждающего электрического поля. Показано, что вдоль электродов формируются игольчатые домены, длина которых может достигать 20 мкм, при нормальных условиях эксплуатации, и длиной до 30 мкм после термоудара образца с охлаждением на 125 °С. **Практическая значимость.** Обнаруженные домены обратного знака в межэлектродном зазоре могут оказывать влияние на электрооптические характеристики интегрально-оптических фазовых модуляторов на ниобате лития, что требует учета особенностей формирования доменов при проектировании топологии электродов и эксплуатации модуляторов.

Ключевые слова

ниобат лития, фазовый модулятор, волновод, пироэлектрический эффект, пироэлектрическое поле, домен, игольчатый домен, зародышеобразование, переключение поляризации, доменная стенка, силовая микроскопия пьезоотклика

Благодарности

Работа выполнена в Университете ИТМО при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, название проекта «Создание производства волоконно-оптических гироскопов для контрольно-измерительных устройств и наземных транспортных систем», Соглашение № 075-11-2019-026 от 27.11.2019.

Авторы благодарят центр «Информационные оптические технологии» Университета ИТМО за предоставленную помощь в анализе распределения доменов методом силовой микроскопии пьезоотклика. Также выражают личную признательность за помощь в получении изображений на конфокальном лазерном сканирующем микроскопе Виктору Валерьевичу Захарову и доменов на электронном сканирующем микроскопе Вячеславу Юрьевичу Бобову.

Ссылка для цитирования: Аксарин С.М., Смирнова А.В., Шулепов В.А., Парфенов П.С., Стригалева В.Е., Мешковский И.К. Исследование пироэлектрического спонтанного переключения доменов в межэлектродном зазоре фазового модулятора на основе титан-диффузионных волноводов в кристаллах ниобата лития // Научно-технический вестник информационных технологий, механики и оптики. 2021. Т. 21, № 3. С. 361–373. doi: 10.17586/2226-1494-2021-21-3-361-373

The study of spontaneous domain nucleation in the interelectrode gap of phase modulator based on titanium indiffused waveguides in lithium niobate crystals

Stanislav M. Aksarin¹✉, Alena V. Smirnova², Vladimir A. Shulepov³, Peter S. Parfenov⁴, Vladimir E. Strigalev⁵, Igor K. Meshkovskiy⁶

^{1,2,3,4,5,6} ITMO University, Saint Petersburg, 197101, Russian Federation

¹ staksar@gmail.com✉, <http://orcid.org/0000-0002-7482-3072>

² 79213040490@ya.ru, <http://orcid.org/0000-0001-6898-3400>

³ shulepov_vladimir@mail.ru, <http://orcid.org/0000-0003-2168-8046>

⁴ psparfenov@itmo.ru, <http://orcid.org/0000-0002-5983-841X>

⁵ vestrigalev@itmo.ru, <http://orcid.org/0000-0002-7151-9235>

⁶ igorkm@itmo.ru, <http://orcid.org/0000-0003-3470-1000>

Abstract

The paper presents the analysis of nucleating kinetics and growing of switched domains in the surface layer of monodomain lithium niobate *X*-cut crystal in the interelectrode gap of integrated optical phase modulators. The work proposes the morphology model of domains growing along the boundary of surface electrodes in *X*-cut phase modulators. The mechanism of spontaneous needle-like domain growing as a result of the electric field induced by the pyroelectric effect at temperature changing of the crystal was theoretically substantiated. The Comsol Multiphysics cross-platform was used for the numerical estimation of the pyroelectric field in the interelectrode gap. The needle-like domain structures were studied experimentally at industrial samples of integrated optical phase modulators based on Ti:LiNbO₃ waveguides. The experimental research of the form and size of domains was performed with the anisotropic etching method by HF solution and followed by visual analysis. For non-destructive testing, the authors used scanning electron microscopy and piezo-response force microscopy. For the first time, the morphology of needle-like domains occurring in the interelectrode gap of phase modulators based on lithium niobate was experimentally studied. The results showed the theoretical and numerical model of domain growing that involves the pyroelectric nature of the electric field. It was demonstrated that along the electrode boundary, the needle-like domains grow up to 20 μm long at normal conditions and achieve 30 μm after the thermal shock by cooling at $\Delta T = -125$ °C. The discovered switched domains in the interelectrode gap can affect electro-optical characteristics of integrated optical phase modulators with the lithium niobate base and should be taken into account in the future design of electrode topology and modulator usage.

Keywords

lithium niobate, phase modulator, waveguide, pyroelectric effect, pyroelectric field, domain, needle-like domain, nucleating, polarization switching, domain wall, piezo-response force microscopy.

Acknowledgements

This work was done at ITMO University and was supported by the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation under the Agreement No. 075-11-2019-026 of 27.11.2019, the project title: “The production development of fiber-optic gyroscopes for applications in measuring instruments and land vehicle systems”.

We acknowledge support from the CIOT ITMO University for PFM measuring. We are also grateful to Viktor V. Zakharov for CLSM image measuring and Vyacheslav Yu. Bobov for SEM measuring and valuable discussions.

For citation: Aksarin S.M., Smirnova A.V., Shulepov V.A., Parfenov P.S., Strigalev V.E., Meshkovskiy I.K. The study of spontaneous domain nucleation in the interelectrode gap of phase modulator based on titanium indiffused waveguides in lithium niobate crystals. *Scientific and Technical Journal of Information Technologies, Mechanics and Optics*, 2021, vol. 21, no. 3, pp. 361–373 (in Russian). doi: 10.17586/2226-1494-2021-21-3-361-373

Введение

Кристалл ниобата лития (НЛ) имеет широкую область применения в оптоэлектронике. Ключевая особенность использования фазовых модуляторов (ФМ) на основе кристаллов НЛ — возможность формирования модуляций ступенчатого типа в спектральном диапазоне до нескольких десятков гигагерц. Вместе с тем при

построении высокочувствительных сенсоров перед разработчиками ставится задача обеспечения долговременной стабильности электрооптических параметров модулятора (полуволновое напряжение, дрейф рабочей точки, временная стабильность амплитудно-частотной характеристики). Известно, что нарушение стабильности параметров вызвано в первую очередь сегнетоэлектрической природой кристалла НЛ. Одна из причин

нестабильности — перераспределение электрических зарядов в НЛ в области прикладываемого внешнего электрического поля [1]. Еще одна возможная причина — влажность окружающей среды, что приводит к изменению характеристики поверхностной проводимости, изменению передаточной характеристики устройства и росту амплитуды дрейфа [2, 3]. Также распространенная проблема — температурное влияние на сдвиг фазы и флуктуации уровня оптической мощности выходного сигнала. К источникам такого возмущения относят эластооптический эффект [4, 5], возникающий за счет поверхностного натяжения от нанесенных электродов и покрытий, а также пьезоэлектрический эффект [5], вызывающий паразитный сдвиг фазы сигнала при температурных флуктуациях и приводящий к изменению волноводных характеристик вплоть до полного исчезновения волноводного режима [6]. Несмотря на большое количество проведенных исследовательских работ, проблема нестабильности параметров модулятора на основе НЛ остается актуальной.

В работе рассмотрены условия формирования микродоменов, их локализация на поверхности модулятора НЛ, представлены различные методы их визуализации и измерения, а также дана качественная оценка влияния доменов в межэлектродном зазоре на проблему нестабильности параметров модулятора.

Зарождение доменов, доменные стенки и кинетика переключения доменов

Сегнетоэлектрическая природа НЛ приводит к существованию ряда особенностей его физических свойств. В полярной фазе наблюдается явление спонтанной поляризации, причем в одноосных кристаллах симметрии $3m$, к которой принадлежит НЛ, вектор поляризации имеет ориентацию, параллельную полярной оси кристалла Z , что приводит к существованию лишь антипараллельных 180° доменов [7–9] или доменов, у которых векторы поляризации параллельны и противоположно направлены.

Кинетика переключения доменов и смена направления вектора поляризации в НЛ характеризуется тремя стадиями. Первая — зарождение встречно поляризованных игольчатых доменов и клиньев вдоль Z^+ полярной поверхности НЛ, направленных в глубину кристалла (по направлению к Z^-). Вторая стадия описывается ростом доменов в длину и ширину, за счет движения доменной стенки, коалесценцией доменов (слияние нескольких доменов в один), зарождением отдельных доменов в глубине и на поверхности Z^- , и сопровождается ростом электрического тока переноса зарядов. Завершающей стадией является формирование единого домена обратной полярности во всем объеме кристалла и исчезновением электрического тока [10].

Обычно переключение направления поляризации кристалла из состояния покоя выглядит в виде смещенной петли гистерезиса с резким переходом между полярными состояниями [11]. Смещение петли вдоль оси ординат свидетельствует о присутствии внутреннего электрического поля на уровне около 2–3 МВ/м (в НЛ конгруэнтного состава), которое стремится раз-

вернуть поляризацию домена к исходному состоянию. Известно, что природа существования внутреннего поля связана с наличием дефектов в упорядоченной решетке конгруэнтного НЛ, обусловленных внутренними источниками поля смещения, в том числе остаточным деполяризующим полем, вызванным граничными и внешними поверхностными зарядами, а также объемными экранирующими зарядами [7, 8, 12–14].

НЛ при комнатной температуре находится в «глубокой» полярной фазе, обладая сильной электрической индукцией $0,71$ Кл/м², что вызывает значительное деполяризующее электрическое поле E_{dep} , силовые линии которого направлены по нормали к полярным граням. Для компенсации такого поля к поверхностям полярных граней притягиваются свободные заряды из окружающей среды, формируя поверхностный экранирующий заряд. Колебания температуры кристалла приводят к нарушению баланса между уровнями экранирующего и деполяризующего поля, что вызывает проявление пьезоэлектрического поля E_{py} . Температурная зависимость спонтанной поляризации НЛ в области комнатных температур является линейной и определяет пьезоэлектрический коэффициент p^σ , который имеет значения в диапазоне 40–110 мкКл/(м²·К) [15–17]. Флуктуация температуры вызывает высвобождение эквивалентного свободного заряда на полярных гранях по формуле:

$$\Delta Q(\Delta T) = p^\sigma S \Delta T, \quad (1)$$

где S — площадь поверхности полярной грани, что приводит к проявлению пьезоэлектрического поля, достигая значения 400 кВ/м при $\Delta T = 1^\circ\text{C}$ согласно выражению:

$$E_{py}(\Delta T) = \frac{\Delta Q}{\varepsilon \varepsilon_0 S} = \frac{p^\sigma}{\varepsilon \varepsilon_0} \Delta T, \quad (2)$$

где ε — диэлектрическая проницаемость НЛ; ε_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума; ΔT — разность температур.

Сильные электрические поля не могут существовать длительное время на поверхности НЛ. Снижение уровня заряда определяется механизмом рекомбинации и стекания зарядов как через объем НЛ, так и при взаимодействии с зарядами окружающей среды. Скорость рекомбинации определяется выражением для максвелловской релаксации и зависит от уровня проводимости НЛ.

Известно, что НЛ обладает двумя типами электрической проводимости — ионной и электронной, что позволяет описывать температурную зависимость уравнением Аррениуса с учетом концентрации примесей и подвижности носителей первого и второго типа [18]. Для НЛ конгруэнтного состава при комнатной температуре значение удельной электрической проводимости может находиться в диапазоне 10^{-16} – 10^{-18} См/м, что приводит к времени релаксации на уровне нескольких суток. Длительная релаксация заряда приводит к необходимости его учета при исследовании температурных явлений. Также необходимо выделить особый тип проводимости вдоль границы раздела встречных доменов, именуемой доменной стенкой [19]. В случае наличия доменной стенки, непараллельной оси Z , проводимость

может значительно возрастая, а релаксация зарядов ускорится.

Отметим, что описываемый механизм переключения доменов в НЛ является в достаточной степени изученным явлением и позволяет дать оценку кинетике зарождения доменов и их последующего роста. Зарождение и рост игольчатых доменов в межэлектродном зазоре электрооптических модуляторов требует особого внимания.

Особенность зарождения и роста встречных доменов в межэлектродном зазоре

Рассмотрим классический случай формирования пьезоэлектрического поля в кристалле НЛ без электродов. Изменение температуры кристалла приводит к мгновенной смене значения спонтанной поляризации ΔP_s . Повышение температуры влечет к ослаблению деполяризующего поля E_{dep} и частичному освобождению экранирующих поверхностных зарядов в количестве, рассчитываемом по формуле (1), что вызывает образование пьезоэлектрического поля

$$E_{py} = E_{scr} - E_{dep},$$

где E_{scr} — напряженность электрического поля, образованная экранирующими поверхностными зарядами в состоянии равновесия.

При понижении температуры смена знака пьезоэлектрического поля происходит за счет увеличения напряженности поля деполяризации в кристалле из-за увеличения значения спонтанной поляризации. Пространственное распределение пьезоэлектрического

поля внутри кристалла преимущественно однородное и равномерное, векторы силовых линий электрического поля параллельны полярной оси кристалла, аналогично полю в конденсаторе с плоскопараллельными пластинами (рис. 1).

На основе выражений (1) и (2) можно показать, что нагрев кристалла на $\Delta T = 100$ °С способен привести к спонтанному переключению домена за счет нарастания пьезоэлектрического поля до уровня коэрцитивного (10^7 В/м). Однако такая ситуация оказывается маловероятной во всем объеме кристалла, так как нагрев кристалла одновременно способствует повышению объемной проводимости [20], что приводит к уменьшению постоянной времени релаксации зарядов с каждым последующим градусом, предотвращая накопление критического уровня напряженности электрического поля.

С другой стороны, наличие электродов на неполярной поверхности, как в образцах реальных ФМ, требует детального анализа. Рассмотрим поперечное сечение образца модулятора X-среза, содержащего два электрода на поверхности, параллельной ZY плоскости кристалла (рис. 2).

Так как электроды на поверхности НЛ — электрические проводники, то пьезоэлектрическое поле вызывает перераспределение свободных зарядов в проводнике и их скопление на краях электродов, тем самым искажая картину распределения силовых линий в объеме кристалла. Таким образом, в области краев электродов за счет коронного эффекта формируется высокий уровень напряженности электрического поля. Проекция вектора электрического поля на ось Z во всех точках зазора будет сонаправлена с направлением поляризации кристалла, что будет приводить к паразитному сдвигу фазы в зазоре за счет электрооптического эффекта. При охлаждении нарастает некомпенсированное внутреннее поле деполяризации, что приводит к смене ориентации силовых линий в объеме кристалла и в межэлектродном зазоре, где вектор напряженности электрического поля направлен навстречу основной поляризации кристалла (рис. 3).

Электростатический расчет модели двумерного сечения модулятора выполнен с помощью программного пакета Comsol Multiphysics с использованием модуля

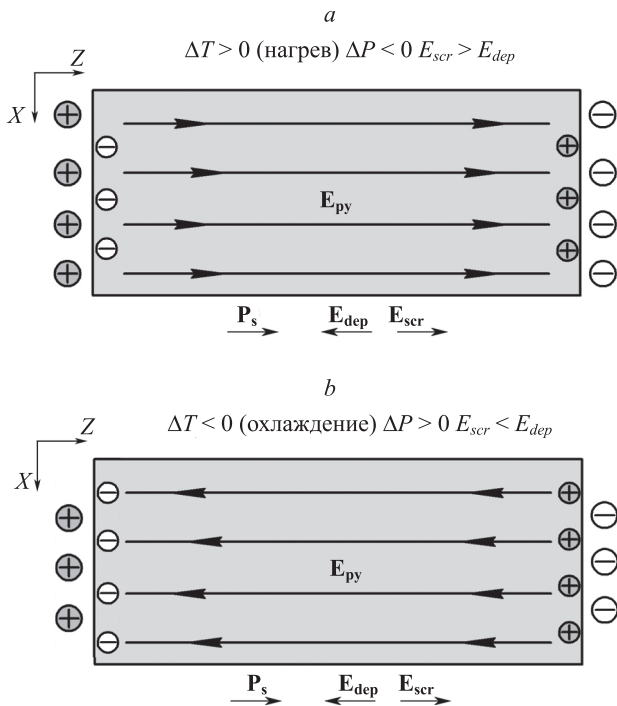


Рис. 1. Схема распределения силовых линий напряженности пьезоэлектрического поля в ниобате лития во время нагрева (a) и охлаждения (b)

Fig. 1. The force lines distribution scheme of the pyroelectric field in the lithium niobate at heating (a) and cooling (b)

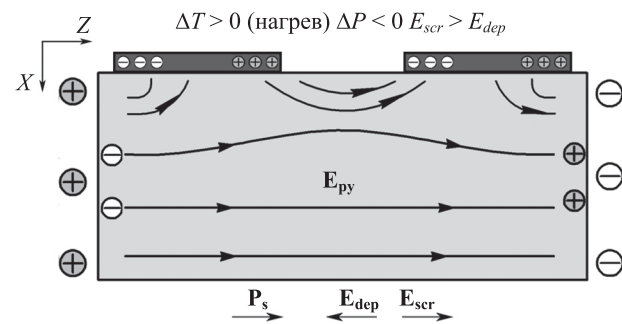


Рис. 2. Схема распределения силовых линий напряженности пьезоэлектрического поля в ниобате лития во время нагрева, при наличии электродов на поверхности образца

Fig. 2. The force lines distribution scheme of the pyroelectric field in the lithium niobate with surface electrodes at heating

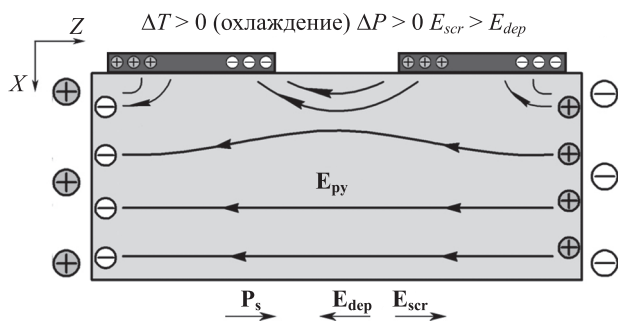


Рис. 3. Схема распределения силовых линий напряженности пьезоэлектрического поля в ниобате лития во время охлаждения при наличии электродов на поверхности образца

Fig. 3. The force lines distribution scheme of the pyroelectric field in the lithium niobate with surface electrodes at cooling

AC/DC и физики Electrostatics в стационарном режиме. В модели использован образец модулятора с размером кристалла 5×1 мм, шириной электродов 2,4 мм, толщиной электродов 0,4 мкм и межэлектродным зазором 20 мкм (рис. 4, 5). В объеме кристалла задано температурно-зависимое значение электрической индукции согласно уравнению $D(\Delta T) = 0,71 - 59,8 \cdot 10^{-6} \Delta T$ Кл/м², вектор которой сонаправлен с осью Z и совпадает со значением и ориентацией вектора поляризации \mathbf{P}_s в кристалле, при отсутствии внешних полей. При этом на полярных гранях поверхностная плотность заряда равна $\pm 0,71$ Кл/м², и позволяет полностью скомпенсировать индуцированное внутреннее поле в отсутствие температурных флуктуаций. Расчеты осуществлены для изменения температуры $\Delta T = -1$ °C.

В результате расчета видно, что на поверхности кристалла в центре межэлектродного зазора формируется пьезоэлектрическое поле, достигающее значений $E_z \approx 3,4 \cdot 10^6$ В/м (рис. 5). Также видно, что напряженность электрического поля на краях электродов вследствие коронного эффекта может превышать коэрцитивное поле, что является предпосылкой для зародышеобразования доменов обратного знака. Анализируя

расчетную модель, можно предположить, что для запуска процесса переключения поляризации приповерхностного слоя во всей ширине межэлектродного зазора достаточно понизить температуру образца на величину $\Delta T \geq 5$ °C.

На рис. 6 показан участок межэлектродного зазора с цветными контурными линиями эквипотенциала напряженности электрического поля E_z . Из распределения можно сделать вывод о том, что домены могут прорасти также и в глубину объема кристалла вдоль оси X. Согласно теории зародышеобразования в НЛ, наиболее вероятными являются процессы 1D и 2D разрастания доменов за счет того, что энергетические барьеры, необходимые для создания ступенек на существующей доменной стенке, значительно ниже, чем при образовании новых доменов [21]. С учетом анализа научных работ других авторов и сопоставления результатов расчетного моделирования с данными, полученными экспериментально, можно предположить следующие стадии формирования доменов в межэлектродном зазоре:

- зарождение отдельных зерен нано-доменов вдоль границы электрода за счет коронного эффекта вокруг электрода;
- проращение игольчатого домена вдоль оси Z (1D рост);
- движение доменной стенки игольчатого домена в ширь и в глубину (2D рост);
- продолжение роста 1D игольчатых доменов и коалесценция начального участка в единый домен.

На рис. 7 схематично показаны стадии кинетики разрастания встречного домена (красным), а также вероятная форма и относительные размеры домена, берущего свое начало на границе с электродом (желтым), где контур конечного домена с размерами $a, 0,75a$ и $0,1a$ определяется пространственной формой распределения эквипотенциала для E_z .

Приведенный пример расчетного моделирования доказывает возможность существования условий для возникновения игольчатых доменов в межэлектродном зазоре вследствие пьезоэлектрического эффекта во всех

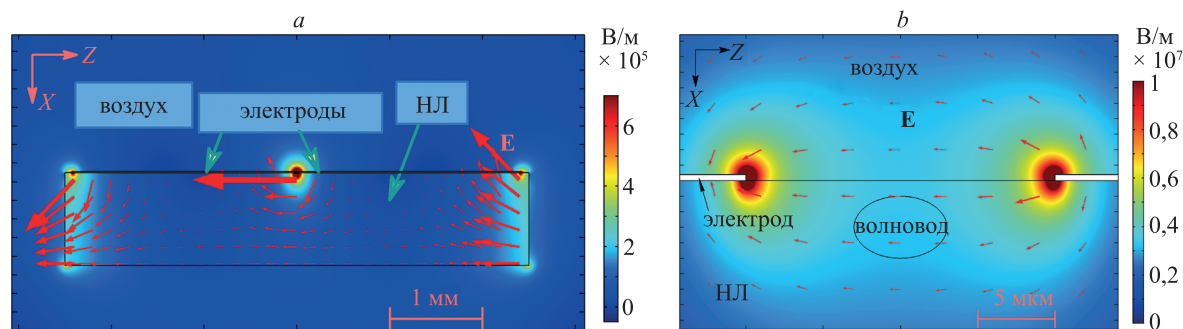


Рис. 4. Модель распределения пьезоэлектрического поля в сечении ниобата лития: с двумя электродами при охлаждении на 1 °C (a); в области межэлектродного зазора (b). Цветом показана величина напряженности электрического поля.

Стрелки характеризуют относительную величину напряженности электрического поля и направление \mathbf{E} в точке основания стрелки

Fig. 4. Pyroelectric field distribution model in the cross section of the lithium niobate with two surface electrodes after cooling by 1 °C (a); in the region of the interelectrode gap (b).

The color indicates the magnitude of the electric field. Red arrows characterize the relative magnitude of the electric field and the direction of the vector \mathbf{E} at the arrow base

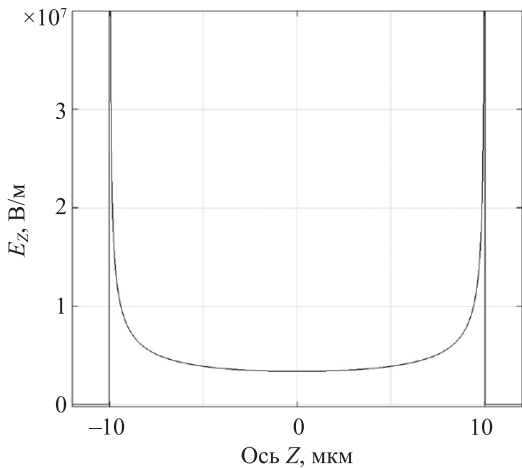


Рис. 5. Напряженность пьезоэлектрического поля (E_z компонента) вдоль границы кристалл-воздух при наличии двух электродов на верхней поверхности. Координаты «-10» и «10» мкм – места окончания электродов

Fig. 5. Pyroelectric field (E_z component) along the crystal-air interface with two electrodes on the top surface.

Coordinates equal to -10 and 10 microns are the end of the electrodes

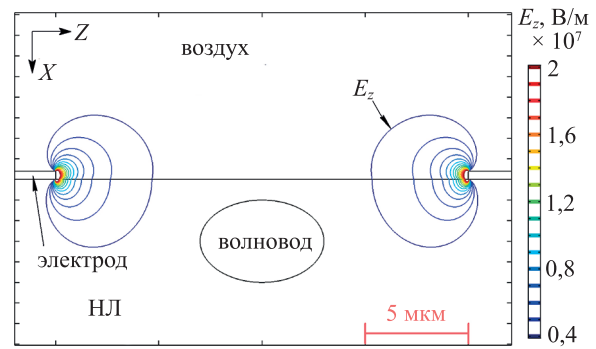


Рис. 6. Модель распределения напряженности пьезоэлектрического поля в сечении ниобата лития в области межэлектродного зазора. Контурными линиями показаны эквипотенциалы компоненты поля E_z .

Линии значений, лежащих за пределами диапазона $(0,4-2) \cdot 10^7$ В/м, не показаны

Fig. 6. Pyroelectric field distribution model in the cross-section of the lithium niobate in the region of the interelectrode gap.

The contour lines show the equipotentials of the E_z field component.

Lines of values lying outside the range of $(0,4-2) \cdot 10^7$ V/m are not shown

модуляторах, что и будет продемонстрировано в экспериментальной части исследования.

Экспериментальные результаты и обсуждение

Для визуализации и анализа доменов использовались как разрушающие (анизотропное травление), так и неразрушающие методы контроля (сканирующая электронная микроскопия и пьезоэлектрическая силовая микроскопия). Результаты травления наблюдались в оптическом микроскопе и с помощью конфокального лазерного сканирующего микроскопа (КСЛМ).

Анизотропное химическое «мокрое» травление.

Анизотропное травление в водном растворе плавиковой кислоты (HF 49 %) позволяет производить селективное травление НЛ. Количественное описание и характер травления НЛ по осям X , Y и Z рассмотрено в работах [22–25]. Стоит отметить, что в образцах НЛ X -среза травление X поверхности вызывает затруднения для задачи обнаружении значимого контраста между X^- и X^+ ориентациями. Тем не менее, возможность наблюдения доменов при травлении остается за счет того, что в первую очередь травлению подвергаются зоны дефектов кристаллической решетки над доменными

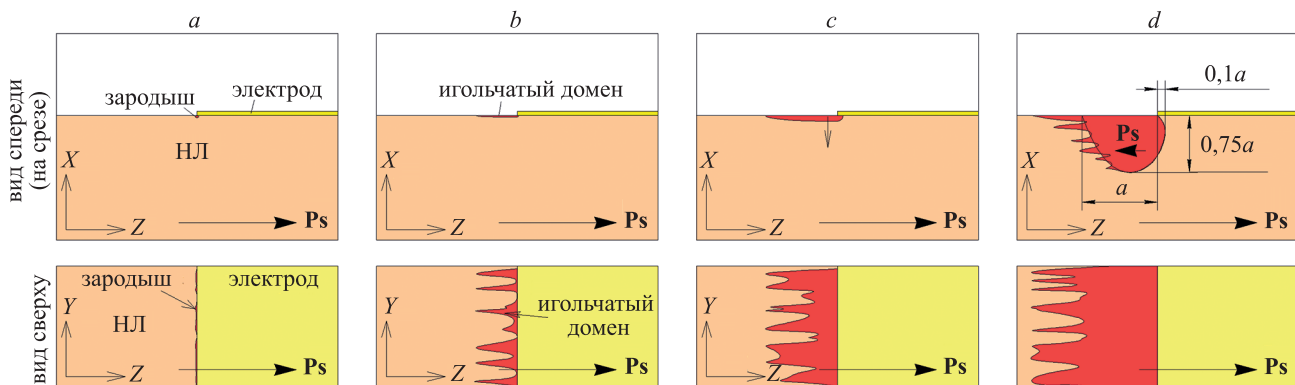


Рис. 7. Стадии возникновения зародыша домена и разрастания доменной структуры под действием электрического поля в межэлектродном зазоре шириной 20 мкм (второй электрод не показан): образование отдельных зерен нано-доменов вдоль границы электрода (a); прорастание игольчатого домена вдоль оси Z (1D рост) (b); движение доменной стенки игольчатого домена в ширь и в глубину (2D рост) (c); продолжение роста 1D игольчатых доменов и коалесценция начального участка в единый домен (d). Направление вектора спонтанной поляризации \mathbf{Ps} в кристалле показано стрелками

Fig. 7. Stages of the formation of a domain nucleus and the domain structure growth after the electric field applying in the interelectrode gap 20 μm wide (the second electrode is not shown): nucleating of isolated nano-domain along the electrode edge (a); growth of needle-like domains parallel to Z -axis (1D growth) (b); moving of the domain wall of a needle-like domain in width and depth directions (2D growth) (c); 1D growth continuation and foot segments of needle-like domains coalescence (d). The spontaneous polarization vector \mathbf{Ps} orientation is shown by the arrow

стенками, что приводит к образованию узких канавок. Изучение доменных структур на поверхности НЛ путем анизотропного травления является разрушающим методом контроля.

Сканирующая электронная микроскопия. Сканирующая электронная микроскопия (СЭМ) — методически сложный и неоднозначный метод неразрушающего контроля доменов в НЛ, одновременно способный вносить изменения в форму и размеры наблюдаемых доменов [26, 27]. Наблюдение доменов осуществляется за счет различий между скоростью заряда образца НЛ с доменами со встречной ориентацией [28, 29], что позволяет визуализировать домены разных знаков по контрасту изображения, получаемого на детекторе за счет эмиссии вторичных электронов. При заземлении электродов модулятора для устранения эффекта электронного насыщения поверхности и понижения ускоряющего напряжения до 3 кВ удалось наблюдать домены на образцах ФМ в области межэлектродного зазора.

Силовая микроскопия пьезоотклика. В качестве традиционного метода для анализа доменов в пьезоэлектриках применяется силовая микроскопия пьезоотклика (СМП) на основе атомно-силовой микроскопии с использованием проводящего зонда в контактном режиме, позволяющего производить локальное измерение амплитуды колебания образца вследствие приложения переменного электрического напряжения посредством зонда [30–32]. Домены разных знаков меняют фазу колебания поверхности под действием возбуждающего поля, что также позволяет регистрировать доменные стенки в сегнетоэлектриках.

В настоящем исследовании использованы образцы НЛ X-среза в виде multifunctional интегрально-оптической схемы (МИОС), на которой одновременно присутствуют поляризатор, волноводный разветвитель и электрооптический фазовый модулятор, схема которого и области наблюдения в эксперименте показаны на рис. 8. Поляризатор и электроды фазового модулятора представляют собой металлические электроды, сформированные путем напыления проводящего металла на поверхность. Волновод выполнен путем диффузии титана в приповерхностный слой НЛ. Межэлектродный зазор составляет около 18–20 мкм. Образцы МИОС являются новыми и не были подвержены какой-либо предварительной обработке.

В таблице представлен перечень образцов и способы наблюдения за доменами.

Образцы № 1, 2 и 4 подвергались травлению в водном растворе плавиковой кислоты путем полного погружения всего образца, а затем оптическому анализу поверхности. Образец № 4 был предварительно разделен на две части № 4.1 и № 4.2, чтобы обеспечить адекватное сравнение вклада термообработки в рост доменов. Образец № 3 не подвергался травлению и использовался для оценки доменной структуры методами СЭМ и СМП.

На рис. 9 изображен результат травления поверхности образца № 1 области поляризатора (поз. 1, рис. 8). На рис. 9, а показана микрофотография угла алюминиевого электрода, где заметен контур границы электрода. Вертикально-ориентированные полосы явля-

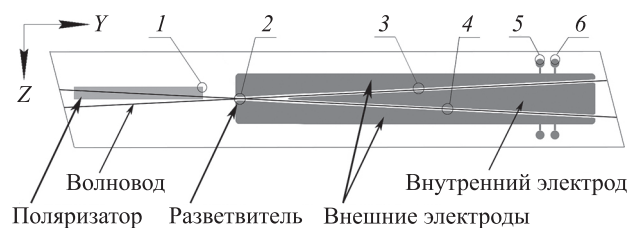


Рис. 8. Схематическое изображение топологии многофункциональной интегрально-оптической схемы (вид сверху).

Цифры показывают позиции, в которых производилось изучение доменов

Fig. 8. A schematic representation of the multifunctional integrated optical chip topology, top view.

The numbers show the positions in which the domains were studied

ются протравленными канавками на поверхности и характеризуют расположение игольчатых доменов, причем ближе к краю электрода наблюдается «отрыв» начала полос доменов от контурной линии электрода. Наблюдаемый зазор между контуром электрода и началом вертикальной линии является областью домена обратного знака. Данный факт, вызвавший глубокое переключение домена, свидетельствует о наличии сильного электрического поля вследствие коронного эффекта на окончаниях электродов.

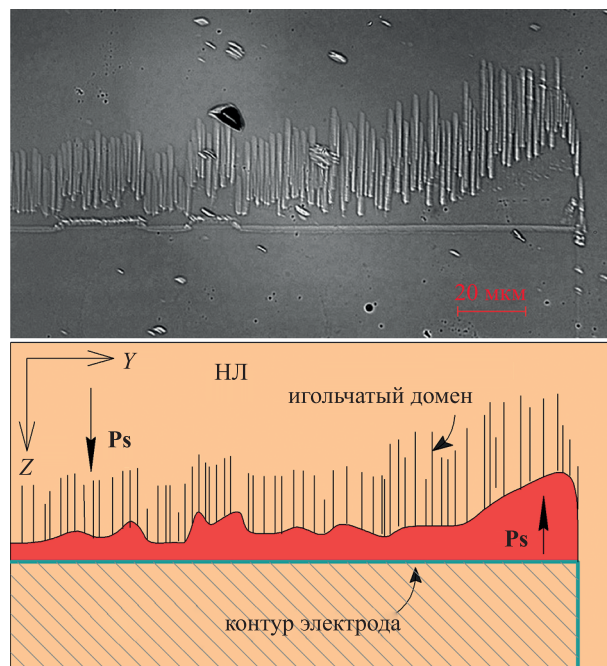


Рис. 9. Образец № 1. Травление 60 мин. Участок окончания алюминиевого электрода (вид сверху). Схема расположения (вид снизу) контура электрода и игольчатых доменов (красным цветом отмечен встречный домен, стрелками — ориентации основного и встречного доменов)

Fig. 9. Sample 1. Etching 60 min. The section of the end of the aluminium electrode (top). The scheme of the electrode contour and needle domains placement (bottom view). The switched domain is shown in red. The arrows show the orientations of the main and switched domains

Таблица. Перечень образцов и способы обработки образцов

Table. The list of samples and the processing methods

Номер образца	Обработка	Способ наблюдения	Позиция на схеме
1	HF (60 мин)	световой микроскоп	1
2	HF (5 мин)	КСЛМ	2, 3
3	без обработки	СЭМ, СМП	3
4.1	HF (20 мин)	световой микроскоп	4
4.2	термоудар $\Delta T = -125$ °C, HF (20 мин)	световой микроскоп	5, 6

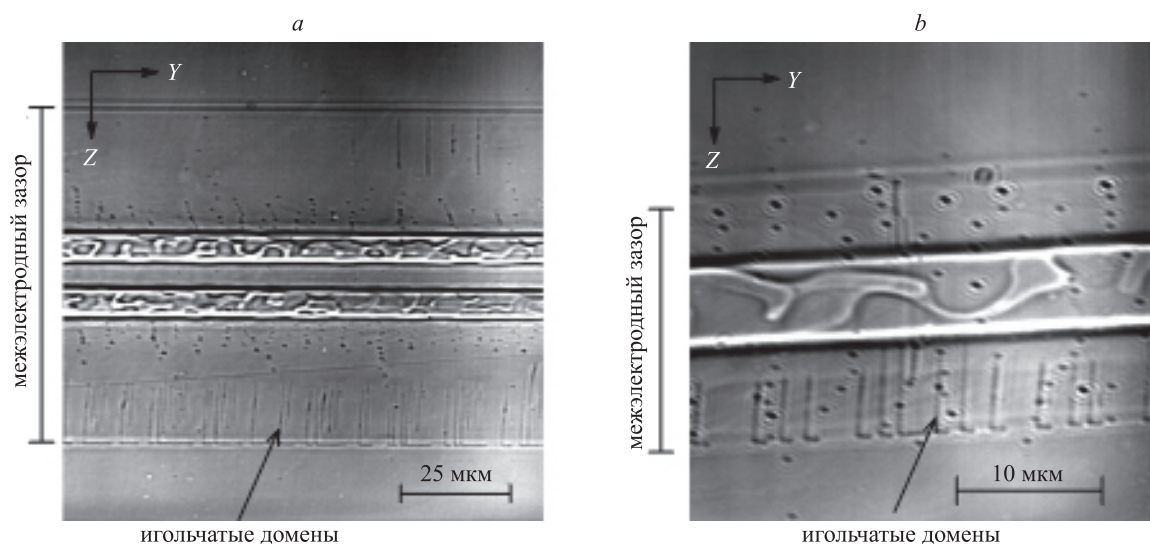


Рис. 10. Образец № 2. Травление 5 мин. Участок волноводного разветвителя. Ширина между электродами 110 мкм. Видны линии игольчатых доменов, начинающихся от контура нижнего электрода (а). Участок межэлектродного зазора модулятора (ширина 20 мкм) с волноводом по середине (b)

Fig. 10. Sample 2. Etching 5 min. Section of the waveguide splitter. The width between the electrodes is 110 μm (a). Lines of needle-like domains are seen starting from the contour of the lower electrode. Section of the interelectrode gap of the modulator (width 20 μm) with a waveguide in the middle (b)

На рис. 10 представлены результаты травления образца № 2 (поз. 2 и 3, рис. 8) межэлектродного зазора модулятора.

Результаты травления показали, что в межэлектродном зазоре модулятора с одним волноводным каналом (поз. 3, рис. 8) присутствуют образования игольчатых доменов со средней длиной 5 мкм и шагом 1–1,5 мкм. При этом в области волноводной связи (поз. 2, рис. 8), где расстояние между электродами достигает 75 мкм длина доменов оказывается значительно больше (около 10–15 мкм), что характеризует обширное переключение поляризации в кристалле.

На рис. 11 показан снимок СЭМ в области межэлектродного зазора образца № 3. В зазоре между электродами видна область кристалла НЛ с волноводом по центру шириной около 6 мкм, где снизу вдоль линии края электрода наблюдается рост доменов игольчатого типа. Видно, что длина доменов составляет около 5 мкм, а шаг около 0,5–0,7 мкм.

Продолжение изучения образца № 3 методом СМП на соседнем волноводе (поз. 4, рис. 8) показало наличие большого числа доменов в межэлектродном зазоре. На рис. 12, а, b показаны изображения топографии и амплитуды колебания сигнала СМП соответственно.

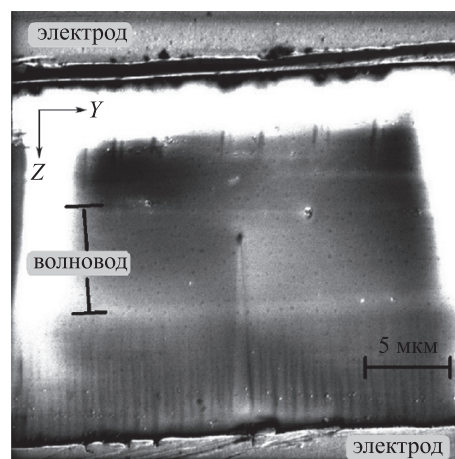


Рис. 11. Образец № 3. Изображение сканирующей электронной микроскопии, детектор вторичных электронов. Участок межэлектродного зазора шириной 20 мкм.

В зазоре вдоль границы нижнего электрода присутствуют игольчатые домены, направленные параллельно оси Z
Fig. 11. Sample 3. SEM image, secondary electron detector. An area of the interelectrode gap with a width of 20 μm . In the gap along the boundary of the lower electrode, there are needle-like domains oriented parallel to the Z axis

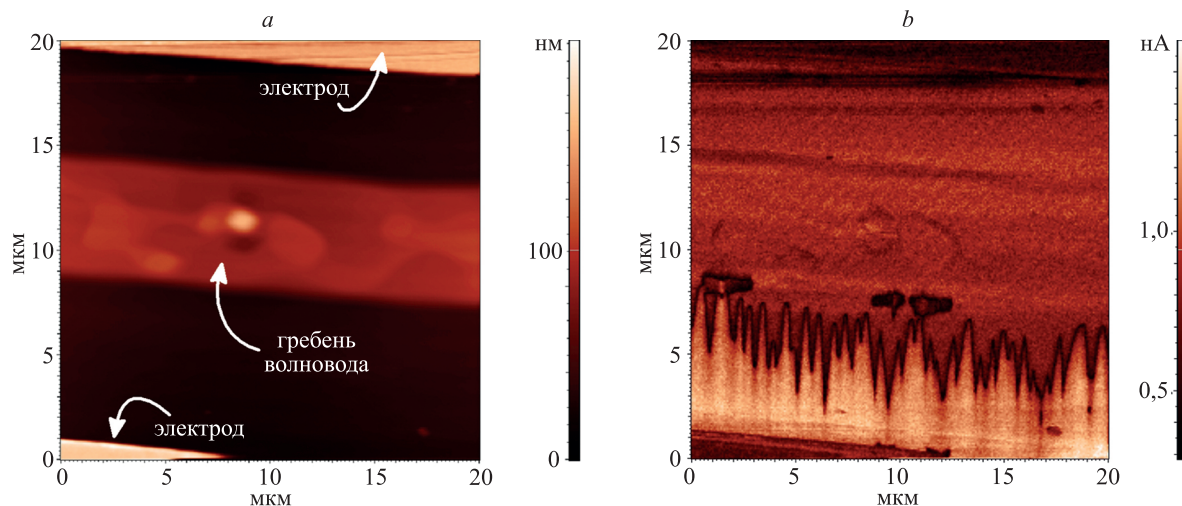


Рис. 12. Образец № 3. Изображение силовой микроскопии пьезоотклика: топография поверхности межэлектродного зазора (а); амплитуда колебаний зонда (b). Участок межэлектродного зазора шириной 18 мкм. Вдоль края нижнего электрода виден участок полного переключения поляризации домена, от которого начинают рост игольчатые домены

Fig. 12. Sample 3. Piezo-force microscopy image: the topography of the interelectrode gap surface (a); the magnitude of the probe oscillations (b). An area of the interelectrode gap with a width of 18 μm . Along the edge of the lower electrode, a section of complete polarization domain switching is visible from which needle-like domains begin to grow

Видно, что между двумя электродами немного возвышается гребень титан-диффузионного волновода на величину около 80 нм, а остальная часть кристалла в межэлектродном зазоре имеет шероховатость менее 5 нм. Однако сигнал пьезоотклика показал хорошо различимую структуру домена обратного знака с игольчатыми выступами в сторону волновода. Наличие сплошного заполнения встречным доменом вдоль электрода позволяет сделать предположение, что электрическое поле переключения домена имело сильный градиент поля вдоль оси Z и X и существовало в этом месте длительное время, что привело к появлению большого числа игольчатых доменов и их последующей коалесценцией. Также на образце модулятора присутствуют области «островков» доменов, которые могли появиться после нескольких циклов переключения поляризации (вследствие естественного термоциклирования образца), что привело к отделению большого первичного домена. Такие «островки» хорошо видны на рис. 13, b.

Вместе с тем было замечено аномальное «ограничение» растущих доменов по оси Z вдоль границы волновода, что может быть вызвано большей проводимостью участка НЛ с повышенной концентрацией титана. Увеличение проводимости приводит к ускоренной релаксации, что будет снижать накопление заряда в области волновода и эффективно понижать напряженность переключающего электрического поля. В редких случаях обнаруживаются домены, пересекающие волноводную область насквозь (рис. 13, a), но такие случаи являются исключением и свидетельствуют о существовании сверхбольшой напряженности электрического поля в данном месте.

В качестве дополнительной проверки теории пироэлектрического механизма переключения поляризации доменов и их дальнейшего роста за счет температурных флуктуаций с сильным градиентом по времени выпол-

нен эксперимент, где образец подвергался термоудару путем помещения его в разогретый термостат и выдержке при 150 °C в течение 10 мин. Далее производилось резкое охлаждение образца на воздухе до 25 °C. Термоудар $\Delta T = -125$ °C вырабатывал сверхвысокую напряженность электрического поля на полярных гранях кристалла, что, в свою очередь, вызывало сильное поле переключения домена на шаге охлаждения образца.

Для сравнения результатов эксперимента с исходным состоянием до термообработки, образец № 4

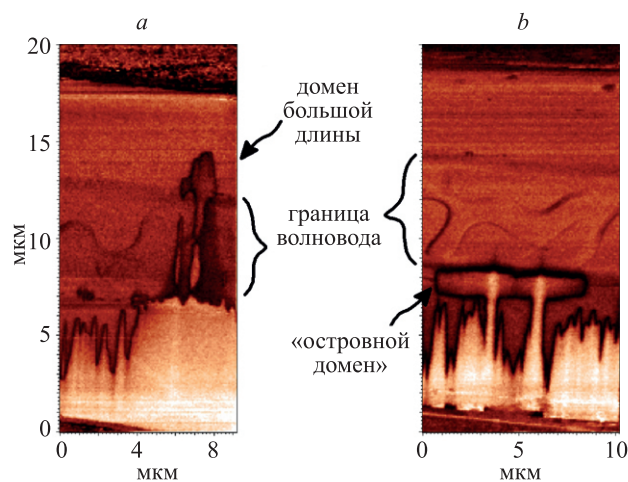


Рис. 13. Образец № 3. Изображение силовой микроскопии пьезоотклика, амплитуда колебаний зонда. Два отдельных участка волновода. Показан домен большой длины, пересекающий волновод (а), и образования доменов «островного» типа (b)

Fig. 13. Sample 3. Piezo-force microscopy image. The magnitude of the probe oscillations. Two separate areas of the waveguide are shown. The ultra-long domain formation crossing the waveguide (a) and the “island” domain (b)

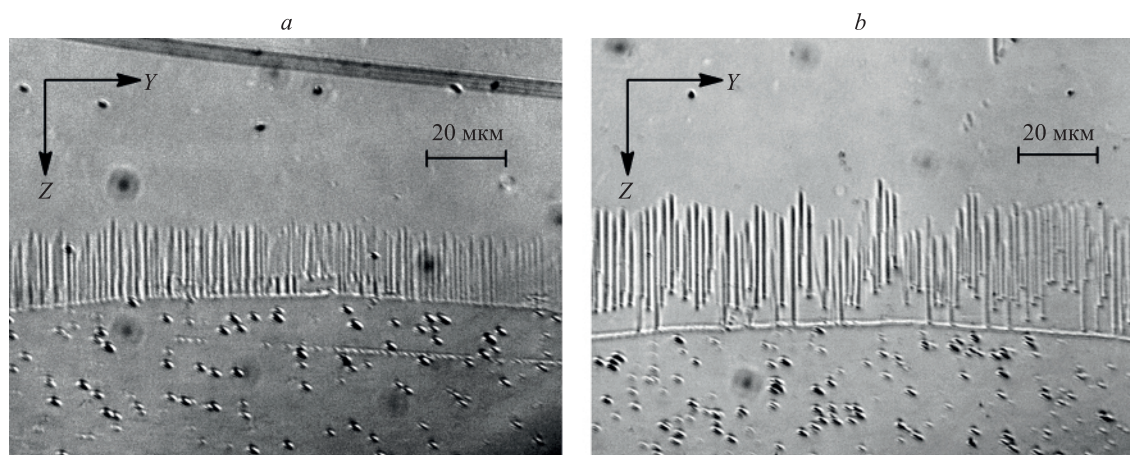


Рис. 14. Сравнение доменов в образце № 4.1 (а) без термообработки и с термообработкой образца № 4.2 (b) после резкого охлаждения с 150 °С до 25 °С

Fig. 14. Comparison of the domains in the sample 4.1 (a) without heat processing and the ones in the sample 4.2 with heat processing (b) after sharp cooling from 150 °C to 25 °C

был предварительно разделен по линии между двумя шарообразными выступами на электроде (поз. 4 и 5, рис. 8) на две части № 4.1 и № 4.2 соответственно. Одна часть (образец № 4.1) не подвергалась термообработке и являлась контрольной. После одновременного травления обоих образцов (HF, 60 °С, 20 мин) можно видеть (рис. 14, b), что в образце № 4.2, после термоудара, игольчатые домены стали более длинными (около 25–30 мкм), чем в образце № 4.1 (около 15–18 мкм). Средний шаг между соседними доменами сохранился на уровне 1,8 мкм в обоих образцах. Следует отметить наличие более обширных участков с полным переключением поляризации вдоль электрода на образце № 4.2. Данный факт подтверждает возникновение сильного пироэлектрического поля, влияющего на степень переключения поляризации доменов во время проведения термоциклирования модулятора. Изменение размеров доменов под действием температуры позволяет утверждать, что доменная картина не является замороженной и продолжает непрерывно изменяться, что может негативно сказываться на характеристиках ФМ.

При анализе экспериментальных результатов всех образцов можно отметить, что дефект в структуре монокристаллического НЛ образуется вдоль границы электрода со стороны, обращенной к оси Z. Дефект представляет собой набор игольчатых доменов, направленных от электрода в сторону оси Z параллельно ей. Причем при большой плотности и длине линий в основании наблюдается их объединение в сплошную полосу дефекта. Ширина области с доменами в межэлектродном зазоре достигает в среднем значений 5–8 мкм от края электрода, при ширине полосы участка полностью переключенного домена вдоль электрода около 2–3 мкм и длине игольчатой части от 2 до 6 мкм со средним шагом 0,5–1,5 мкм. Домены на свободном краю электрода, обращенного к Z-границе, достигают значений 10–40 мкм по длине игольчатой части и с шагом 1–3 мкм.

Заключение

В работе показано, что в межэлектродном зазоре интегрально-оптических модуляторов на основе ниобата лития возникают благоприятные условия для спонтанного зарождения и роста игольчатых доменов обратного знака вследствие пироэлектрического эффекта, что приводит к образованию наноразмерных неоднородностей в области распространения волновой моды. Обосновано, что пироэлектрический эффект — главный источник электрического поля для переключения поляризации домена в межэлектродных зазорах и на внешних границах электродов. Данное утверждение подтверждено экспериментальными результатами для образцов серийно выпускаемых фазовых модуляторов, и показан факт подвижности доменов в условиях температурных флуктуаций. Представлена теоретическая модель, и дано описание морфологии роста доменов обратного знака в межэлектродных зазорах и на границах электродов модуляторов X-среза. Модель позволяет осуществлять анализ вероятности роста игольчатых доменов в реальных модуляторах и может показать, что на краю электрода в кристалле LiNbO₃ образуются зародышевые образования доменов обратного знака. Дальнейший рост домена под действием поля приводит к разрастанию встречного домена и образованию игольчатых ответвлений, параллельных оси Z-кристалла. Особенностью роста доменов в межэлектродном зазоре является замедление роста на границе вдоль контура волновода, сформированного по технологии диффузии титана, что может быть объяснено повышением электрической проводимости в волноводе.

Существование игольчатых доменов в межэлектродном зазоре является структурной неоднородностью для волновода и может приводить к снижению стабильности опико-электронных характеристик фазовых модуляторов вследствие:

- высокой подвижности доменных стенок в условиях тепловых флуктуаций;

- повышенной проводимости на доменных стенках, что приводит к дрейфовым явлениям рабочей точки модуляторов за счет возникновения паразитного РС-контра в эквивалентной схеме модулятора;
- рассеяния и дифракции волноводной моды на границах доменных стенок и модуляции показателя преломления в доменах разного знака при

подаче управляющего сигнала на электродах модулятора;

- снижению эффективного значения полуволнового напряжения модулятора за счет наличия участков вдоль волновода, содержащих домены обратного знака.

Литература

1. Sun S., He M., Xu M., Gao S., Chen Z., Zhang X., Ruan Z., Wu X., Zhou L., Liu L., Lu C., Guo C., Liu L., Yu S., Cai X. Bias-drift-free Mach-Zehnder modulators based on a heterogeneous silicon and lithium niobate platform // *Photonics Research*. 2020. V. 8. N 12. P. 1958–1963. doi: 10.1364/PRJ.403167
2. Bulmer C.H., Greenblatt A.S., Moeller R.P., Burns W.K. Bias point stability of packaged lithium niobate linear modulators // *Proc. Integrated Photonics Research*. Dana Point, California, United States, 1995. P. IFE3. doi: 10.1364/IPR.1995.IFE3
3. Beaumont A.R., Daymond-John B.E., Booth R.C. Effect of ambient water vapour on stability of lithium niobate electro-optic waveguide devices // *Electronics Letters*. 1986. V. 22. N 5. P. 262–263. doi: 10.1049/el:19860180
4. Higuma K., Hashimoto Y., Yatsuki M., Nagata H. Electrode design to suppress thermal drift in lithium niobate modulators // *Electronics Letters*. 2000. V. 36. N 24. P. 2013–2014. doi: 10.1049/el:20001260
5. Nagata H., Oikawa S., Yamada M. Comments on fabrication parameters for reducing thermal drift on LiNbO₃ optical modulators // *Optical Engineering*. 1997. V. 36. N 1. P. 283–286. doi: 10.1117/1.601172
6. Ponomarev R.S., Shevtsov D.I., Karnaushkin P.V. “Shutdown” of the proton exchange channel waveguide in the phase modulator under the influence of the pyroelectric effect // *Applied Sciences*. 2019. V. 9. N 21. P. 4585. doi: 10.3390/app9214585
7. Gopalan V., Mitchell T.E. Wall velocities, switching times, and the stabilization mechanism of 180° domains in congruent LiTaO₃ crystals // *Journal of Applied Physics*. 1998. V. 83. N 2. P. 941–954. doi: 10.1063/1.366782
8. Gopalan V., Mitchell T.E., Furukawa Y., Kitamura K. The role of nonstoichiometry in 180° domain switching of LiNbO₃ crystals // *Applied Physics Letters*. 1998. V. 72. N 16. P. 1981–1983. doi: 10.1063/1.121491
9. Soergel E. Visualization of ferroelectric domains in bulk single crystals // *Applied Physics B: Lasers and Optics*. 2005. V. 81. N 6. P. 729–751. doi: 10.1007/s00340-005-1989-9
10. Кузьминов Ю.С. Электрооптический и нелинейнооптический кристалл ниобата лития. М.: Наука, 1987. 263 с.
11. Gopalan V., Gupta M.C. Origin and characteristics of internal fields in LiNbO₃ crystals // *Ferroelectrics*. 1997. V. 198. N 1. P. 49–59. doi: 10.1080/00150199708228337
12. Ro J.H., Jeon O.-Y., Kim T.-H., Ro J.-H., Cha M. Non-stoichiometric defect effect on coercive field in lithium niobate crystals // *Ferroelectrics*. 2002. V. 269. N 1. P. 231–236. doi: 10.1080/713716050
13. Baturin I.S., Akhmatkhanov A.R., Shur V.Y., Nebogatikov M.S., Dolbilov M.A., Rodina E.A. Characterization of bulk screening in single crystals of lithium niobate and lithium tantalate family // *Ferroelectrics*. 2008. V. 374. N 1. P. 1–13. doi: 10.1080/00150190802418860
14. Shur V.Y., Mingaliev E.A., Lebedev V.A., Kuznetsov D.K., Fursov D.V. Polarization reversal induced by heating-cooling cycles in MgO doped lithium niobate crystals // *Journal of Applied Physics*. 2013. V. 113. N 18. P. 187211. doi: 10.1063/1.4801969
15. Popescu S.T., Petris A., Vlad V.I. Interferometric measurement of the pyroelectric coefficient in lithium niobate // *Journal of Applied Physics*. 2013. V. 113. N 4. P. 43101. doi: 10.1063/1.4788696
16. Parravicini J., Safioui J., Degiorgio V., Minzioni P., Chauvet M. All-optical technique to measure the pyroelectric coefficient in electro-optical crystals // *Journal of Applied Physics*. 2011. V. 109. N 3. P. 033106. doi: 10.1063/1.3544069
17. Евдокимов С.В., Шостак Р.И., Яценко А.В. Аномалии пироэлектрических свойств кристаллов LiNbO₃ конгруэнтного состава // *Физика твердого тела*. 2007. Т. 49. № 10. С. 1866–1870.
18. Яценко А.В., Палатников М.Н., Сидоров Н.В., Притуленко А.С., Евдокимов С.В. Особенности электрической проводимости кри-

References

1. Sun S., He M., Xu M., Gao S., Chen Z., Zhang X., Ruan Z., Wu X., Zhou L., Liu L., Lu C., Guo C., Liu L., Yu S., Cai X. Bias-drift-free Mach-Zehnder modulators based on a heterogeneous silicon and lithium niobate platform. *Photonics Research*, 2020, vol. 8, no. 12, pp. 1958–1963. doi: 10.1364/PRJ.403167
2. Bulmer C.H., Greenblatt A.S., Moeller R.P., Burns W.K. Bias point stability of packaged lithium niobate linear modulators. *Proc. Integrated Photonics Research*. Dana Point, California, United States, 1995, pp. IFE3. doi: 10.1364/IPR.1995.IFE3
3. Beaumont A.R., Daymond-John B.E., Booth R.C. Effect of ambient water vapour on stability of lithium niobate electro-optic waveguide devices. *Electronics Letters*, 1986, vol. 22, no. 5, pp. 262–263. doi: 10.1049/el:19860180
4. Higuma K., Hashimoto Y., Yatsuki M., Nagata H. Electrode design to suppress thermal drift in lithium niobate modulators. *Electronics Letters*, 2000, vol. 36, no. 24, pp. 2013–2014. doi: 10.1049/el:20001260
5. Nagata H., Oikawa S., Yamada M. Comments on fabrication parameters for reducing thermal drift on LiNbO₃ optical modulators. *Optical Engineering*, 1997, vol. 36, no. 1, pp. 283–286. doi: 10.1117/1.601172
6. Ponomarev R.S., Shevtsov D.I., Karnaushkin P.V. “Shutdown” of the proton exchange channel waveguide in the phase modulator under the influence of the pyroelectric effect. *Applied Sciences*, 2019, vol. 9, no. 21, pp. 4585. doi: 10.3390/app9214585
7. Gopalan V., Mitchell T.E. Wall velocities, switching times, and the stabilization mechanism of 180° domains in congruent LiTaO₃ crystals. *Journal of Applied Physics*, 1998, vol. 83, no. 2, pp. 941–954. doi: 10.1063/1.366782
8. Gopalan V., Mitchell T.E., Furukawa Y., Kitamura K. The role of nonstoichiometry in 180° domain switching of LiNbO₃ crystals. *Applied Physics Letters*, 1998, vol. 72, no. 16, pp. 1981–1983. doi: 10.1063/1.121491
9. Soergel E. Visualization of ferroelectric domains in bulk single crystals. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 2005, vol. 81, no. 6, pp. 729–751. doi: 10.1007/s00340-005-1989-9
10. Kuzminov Yu.S. *Electrooptic and nonlinear Optical Crystal of Lithium Niobate*. Moscow, Nauka Publ., 1987, 263 p. (in Russian)
11. Gopalan V., Gupta M.C. Origin and characteristics of internal fields in LiNbO₃ crystals. *Ferroelectrics*, 1997, vol. 198, no. 1, pp. 49–59. doi: 10.1080/00150199708228337
12. Ro J.H., Jeon O.-Y., Kim T.-H., Ro J.-H., Cha M. Non-stoichiometric defect effect on coercive field in lithium niobate crystals. *Ferroelectrics*, 2002, vol. 269, no. 1, pp. 231–236. doi: 10.1080/713716050
13. Baturin I.S., Akhmatkhanov A.R., Shur V.Y., Nebogatikov M.S., Dolbilov M.A., Rodina E.A. Characterization of bulk screening in single crystals of lithium niobate and lithium tantalate family. *Ferroelectrics*, 2008, vol. 374, no. 1, pp. 1–13. doi: 10.1080/00150190802418860
14. Shur V.Y., Mingaliev E.A., Lebedev V.A., Kuznetsov D.K., Fursov D.V. Polarization reversal induced by heating-cooling cycles in MgO doped lithium niobate crystals. *Journal of Applied Physics*, 2013, vol. 113, no. 18, pp. 187211. doi: 10.1063/1.4801969
15. Popescu S.T., Petris A., Vlad V.I. Interferometric measurement of the pyroelectric coefficient in lithium niobate. *Journal of Applied Physics*, 2013, vol. 113, no. 4, pp. 43101. doi: 10.1063/1.4788696
16. Parravicini J., Safioui J., Degiorgio V., Minzioni P., Chauvet M. All-optical technique to measure the pyroelectric coefficient in electro-optical crystals. *Journal of Applied Physics*, 2011, vol. 109, no. 3, pp. 033106. doi: 10.1063/1.3544069
17. Yevdokimov S.V., Shostak R.I., Yatsenko A.V. Anomalies in the pyroelectric properties of LiNbO₃ crystals of the congruent composition. *Physics of the Solid State*, 2007, vol. 49, no. 10, pp. 1957–1962. doi: 10.1134/S1063783407100241

- сталлов LiTaO₃ и LiNbO₃ в области температур 290–450 К // Физика твердого тела. 2015. Т. 57. № 5. С. 932–936.
19. Shur V.Y., Rumyantsev E.L., Nikolaeva E.V., Shishkin E.I. Formation and evolution of charged domain walls in congruent lithium niobate // *Applied Physics Letters*. 2000. V. 77. N 22. P. 3636–3638. doi: 10.1063/1.1329327
 20. Yatsenko A.V., Evdokimov S.V. Effect of an iron impurity on the electrical conductivity of LiNbO₃ crystals // *Physics of the Solid State*. 2020. V. 62. N 3. P. 485–491. doi: 10.1134/S1063783420030269
 21. Шур В.Я., Румянцев Е.Л. Исследование кинетики субмикронных и нано-доменных структур в сегнетоэлектрических монокристаллах при внешних воздействиях: учебное пособие / Уральский государственный университет им. А.М. Горького. Екатеринбург, 2007. 105 с.
 22. Argiolas N., Bazzan M., Bernardi A., Cattaruzza E., Mazzoldi P., Schiavuta P., Sada C., Hangen U. A systematic study of the chemical etching process on periodically poled lithium niobate structures // *Materials Science and Engineering: B*. 2005. V. 118. N 1-3. P. 150–154. doi: 10.1016/j.mseb.2004.12.088
 23. Wicks B.J., Lewis M.H. Direct observations of ferroelectric domains in lithium niobate // *Physica Status Solidi (b)*. 1968. V. 26. N 2. P. 571–576. doi: 10.1002/psb.19680260221
 24. Randles A.B., Esashi M., Tanaka S. Etch rate dependence on crystal orientation of lithium niobate // *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2010. V. 57. N 11. P. 2372–2380. doi: 10.1109/TUFFC.2010.1705
 25. Sones C.L., Mailis S., Brocklesby W.S., Eason R.W., Owen J.R. Differential etch rates in z-cut LiNbO₃ for variable HF/HNO₃ concentrations // *Journal of Materials Chemistry*. 2002. V. 12. N 2. P. 295–298. doi: 10.1039/b106279b
 26. Kokhanchik L.S., Bodnarchuk Y.V., Volk T.R. Electron beam domain writing in reduced LiNbO₃ crystals // *Journal of Applied Physics*. 2017. V. 122. N 10. P. 104105. doi: 10.1063/1.4991509
 27. Vlasov E., Chezganov D., Chuvakova M., Shur V.Y. The ferroelectric domain structures induced by electron beam scanning in lithium niobate // *Scanning*. 2018. V. 2018. P. 7809826. doi: 10.1155/2018/7809826
 28. Aristov V.V., Kokhanchik L.S., Voronovskii Y.I. Voltage contrast of ferroelectric domains of lithium niobate in SEM // *Physica Status Solidi (a)*. 1984. V. 86. N 1. P. 133–141. doi: 10.1002/psa.2210860113
 29. Kokhanchik L.S. The use of surface charging in the SEM for lithium niobate domain structure investigation // *Micron*. 2009. V. 40. N 1. P. 41–45. doi: 10.1016/j.micron.2008.02.009
 30. Jungk T., Hoffmann Á., Soergel E. Contrast mechanisms for the detection of ferroelectric domains with scanning force microscopy // *New Journal of Physics*. 2009. V. 11. N 3. P. 033029. doi: 10.1088/1367-2630/11/3/033029
 31. Shur V.Y., Lobov A.I., Shur A.G., Kurimura S., Nomura Y., Terabe K., Liu X.Y., Kitamura K. Rearrangement of ferroelectric domain structure induced by chemical etching // *Applied Physics Letters*. 2005. V. 87. N 2. P. 022905. doi: 10.1063/1.1993769
 32. Manzo M., Denning D., Rodriguez B.J., Gallo K. Nanoscale characterization of β-phase H_xLi_{1-x}NbO₃ layers by piezoresponse force microscopy // *Journal of Applied Physics*. 2014. V. 116. N 6. P. 066815. doi: 10.1063/1.4891352
 18. Yatsenko A.V., Palatnikov M.N., Sidorov N.V., Pritulenko A.S., Evdokimov S.V. Specific features of electrical conductivity of LiTaO₃ and LiNbO₃ crystals in the temperature range of 290–450 K. *Physics of the Solid State*, 2015, vol. 57, no. 8, pp. 1547–1550. doi: 10.1134/S1063783415050339
 19. Shur V.Y., Rumyantsev E.L., Nikolaeva E.V., Shishkin E.I. Formation and evolution of charged domain walls in congruent lithium niobate. *Applied Physics Letters*, 2000, vol. 77, no. 22, pp. 3636–3638. doi: 10.1063/1.1329327
 20. Yatsenko A.V., Evdokimov S.V. Effect of an iron impurity on the electrical conductivity of LiNbO₃ crystals. *Physics of the Solid State*, 2020, vol. 62, no. 3, pp. 485–491. doi: 10.1134/S1063783420030269
 21. Shur V.Ia., Rumyantsev E.L. *Investigation of Kinetics of Submicron and Nano-Domain Structures in Ferroelectric Single Crystals under External Influence*. Tutorial. Yekaterinburg, Ural State University, 2007, 105 p. (in Russian)
 22. Argiolas N., Bazzan M., Bernardi A., Cattaruzza E., Mazzoldi P., Schiavuta P., Sada C., Hangen U. A systematic study of the chemical etching process on periodically poled lithium niobate structures. *Materials Science and Engineering: B*, 2005, vol. 118, no. 1-3, pp. 150–154. doi: 10.1016/j.mseb.2004.12.088
 23. Wicks B.J., Lewis M.H. Direct observations of ferroelectric domains in lithium niobate. *Physica Status Solidi (b)*, 1968, vol. 26, no. 2, pp. 571–576. doi: 10.1002/psb.19680260221
 24. Randles A.B., Esashi M., Tanaka S. Etch rate dependence on crystal orientation of lithium niobate. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 2010, vol. 57, no. 11, pp. 2372–2380. doi: 10.1109/TUFFC.2010.1705
 25. Sones C.L., Mailis S., Brocklesby W.S., Eason R.W., Owen J.R. Differential etch rates in z-cut LiNbO₃ for variable HF/HNO₃ concentrations. *Journal of Materials Chemistry*, 2002, vol. 12, no. 2, pp. 295–298. doi: 10.1039/b106279b
 26. Kokhanchik L.S., Bodnarchuk Y.V., Volk T.R. Electron beam domain writing in reduced LiNbO₃ crystals. *Journal of Applied Physics*, 2017, vol. 122, no. 10, pp. 104105. doi: 10.1063/1.4991509
 27. Vlasov E., Chezganov D., Chuvakova M., Shur V.Y. The ferroelectric domain structures induced by electron beam scanning in lithium niobate. *Scanning*, 2018, vol. 2018, pp. 7809826. doi: 10.1155/2018/7809826
 28. Aristov V.V., Kokhanchik L.S., Voronovskii Y.I. Voltage contrast of ferroelectric domains of lithium niobate in SEM. *Physica Status Solidi (a)*, 1984, vol. 86, no. 1, pp. 133–141. doi: 10.1002/psa.2210860113
 29. Kokhanchik L.S. The use of surface charging in the SEM for lithium niobate domain structure investigation. *Micron*, 2009, vol. 40, no. 1, pp. 41–45. doi: 10.1016/j.micron.2008.02.009
 30. Jungk T., Hoffmann Á., Soergel E. Contrast mechanisms for the detection of ferroelectric domains with scanning force microscopy. *New Journal of Physics*, 2009, vol. 11, no. 3, pp. 033029. doi: 10.1088/1367-2630/11/3/033029
 31. Shur V.Y., Lobov A.I., Shur A.G., Kurimura S., Nomura Y., Terabe K., Liu X.Y., Kitamura K. Rearrangement of ferroelectric domain structure induced by chemical etching. *Applied Physics Letters*, 2005, vol. 87, no. 2, pp. 022905. doi: 10.1063/1.1993769
 32. Manzo M., Denning D., Rodriguez B.J., Gallo K. Nanoscale characterization of β-phase H_xLi_{1-x}NbO₃ layers by piezoresponse force microscopy. *Journal of Applied Physics*, 2014, vol. 116, no. 6, pp. 066815. doi: 10.1063/1.4891352

Авторы

Аксарин Станислав Михайлович — кандидат физико-математических наук, заведующий лабораторией, Университет ИТМО, Санкт-Петербург, 197101, Российская Федерация, [sc 57191417852](http://orcid.org/0000-0002-7482-3072), <http://orcid.org/0000-0002-7482-3072>, staksar@gmail.com

Смирнова Алена Викторовна — инженер-исследователь, Университет ИТМО, Санкт-Петербург, 197101, Российская Федерация, <http://orcid.org/0000-0001-6898-3400>, 79213040490@ya.ru

Шуленов Владимир Андреевич — инженер-исследователь, Университет ИТМО, Санкт-Петербург, 197101, Российская Федерация, <http://orcid.org/0000-0003-2168-8046>, shulepov_vladimir@mail.ru

Парфенов Петр Сергеевич — кандидат технических наук, доцент, Университет ИТМО, Санкт-Петербург, 197101, Российская Федерация, [sc 16643987700](http://orcid.org/0000-0002-5983-841X), <http://orcid.org/0000-0002-5983-841X>, psparfenov@itmo.ru


Authors


Stanislav M. Aksarin — PhD, Head of Laboratory, ITMO University, Saint Petersburg, 197101, Russian Federation, [sc 57191417852](http://orcid.org/0000-0002-7482-3072), <http://orcid.org/0000-0002-7482-3072>, staksar@gmail.com


Alena V. Smirnova — Research Engineer, ITMO University, Saint Petersburg, 197101, Russian Federation, <http://orcid.org/0000-0001-6898-3400>, 79213040490@ya.ru


Vladimir A. Shulepov — Research Engineer, ITMO University, Saint Petersburg, 197101, Russian Federation, <http://orcid.org/0000-0003-2168-8046>, shulepov_vladimir@mail.ru

Peter S. Parfenov — PhD, Associate Professor, ITMO University, Saint Petersburg, 197101, Russian Federation, [sc 16643987700](http://orcid.org/0000-0002-5983-841X), <http://orcid.org/0000-0002-5983-841X>, psparfenov@itmo.ru

Стригалева Владимир Евгеньевич — кандидат физико-математических наук, доцент, профессор, Университет ИТМО, Санкт-Петербург, 197101, Российская Федерация,  6603225596, <http://orcid.org/0000-0002-7151-9235>, vestrigalev@itmo.ru

Мешковский Игорь Касьянович — доктор технических наук, профессор, профессор, Университет ИТМО, Санкт-Петербург, 197101, Российская Федерация,  6603640937, <http://orcid.org/0000-0003-3470-1000>, igorkm@itmo.ru

Vladimir E. Strigalev — PhD, Associate Professor, Professor, ITMO University, Saint Petersburg, 197101, Russian Federation,  6603225596, <http://orcid.org/0000-0002-7151-9235>, vestrigalev@itmo.ru

Igor K. Meshkovskiy — D.Sc., Full Professor, ITMO University, Saint Petersburg, 197101, Russian Federation,  6603640937, <http://orcid.org/0000-0003-3470-1000>, igorkm@itmo.ru

Статья поступила в редакцию 31.03.2021

Одобрена после рецензирования 14.04.2021

Принята к печати 07.06.2021

Received 31.03.2021

Approved after reviewing 14.04.2021

Accepted 07.06.2021



Работа доступна по лицензии
Creative Commons
«Attribution-NonCommercial»