

# Поверхностные самоподобные нанодоменные структуры, индуцированные лазерным облучением в ниобате лития

© В.Я. Шур, Д.К. Кузнецов, А.И. Лобов, Д.В. Пелегов, Е.В. Пелегова,  
В.В. Осипов\*, М.Г. Иванов\*, А.Н. Орлов\*

Уральский государственный университет,  
620083 Екатеринбург, Россия

\* Лаборатория квантовой электроники, Институт электрофизики Уральского отделения Российской академии наук,  
620016 Екатеринбург, Россия

E-mail: vladimir.shur@usu.ru

(Поступила в Редакцию 10 сентября 2007 г.)

Исследованы самоподобные поверхностные структуры, состоящие из нанодоменных лучей, которые образуются в результате импульсного лазерного облучения в конгруэнтных монокристаллах ниобата лития. Проведено компьютерное моделирование формирования доменной структуры с использованием экспериментально определенных правил роста лучей. Показано, что полученные доменные структуры являются фрактальными объектами с ограниченным диапазоном скейлинга.

Работа выполнена при поддержке Федерального агентства по науке и инновациям (госконтракт № 02.513.11.3128), программы Рособразования „Развитие научного потенциала высшей школы“ (грант РНП 2.1.1.8272), CRDF BRNE и Федерального агентства по образованию (грант РНП 2.2.2.3.2155/УЗ-Р-05-14), РФФИ-офи (грант № 06-02-08149), РФФИ-НЦНИ (грант № 05-02-19648), РФФИ (грант № 07-02-96033 р-урал).

PACS: 42.70.Mр, 77.84.-s, 77.80.-e, 77.90.+k, 85.50.-n

## 1. Введение

Возможность создания периодических сегнетоэлектрических доменных структур с заданными параметрами в кристаллах ниобата лития  $\text{LiNbO}_3$  (НЛ) способствует их применению в устройствах нелинейной оптики. Для совершенствования существующих и разработки новых методов создания доменных структур необходимо понимание механизмов формирования доменной структуры.

Экспериментально показано, что в монокристаллах конгруэнтного НЛ спонтанное обратное переключение после включения внешнего поля может приводить к формированию самоорганизованных квазипериодических доменных структур, состоящих из доменных лучей, строго ориентированных вдоль кристаллографических направлений  $Y$  [1]. Исследование таких структур с помощью методов с высокой разрешающей способностью (сканирующей зондовой и электронной микроскопии) показало, что каждый луч представляет собой цепочку наномасштабных „игольчатых“ доменов диаметром до 20 nm и периодом порядка 100 nm. Такое аномальное „дискретное“ переключение поляризации происходит в сильно неравновесных условиях, вызванных неэффективным экранированием деполяризующих полей [2].

Недавно было показано, что облучение полярной поверхности кристалла конгруэнтного НЛ импульсным УФ-лазером приводит к формированию самоподобной поверхностной доменной структуры глубиной порядка нескольких микрон [3]. Рассмотрение механизмов дискретного переключения в сильно неравновесных условиях, создаваемых облучением импульсным лазерным

излучением большой мощности, представлено в работах [4,5].

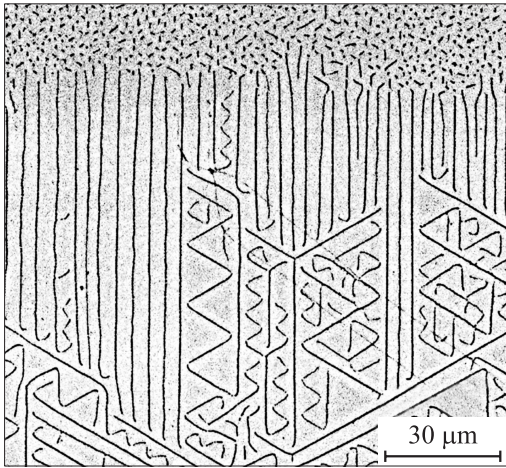
В настоящей работе приведена оригинальная модель, позволяющая объяснить и качественно описать кинетику формирования сложных самоподобных структур, а также представлено сравнение результатов моделирования с экспериментальными данными.

## 2. Эксперимент

Исследовались монодоменные пластины конгруэнтного НЛ толщиной 0.5 mm, вырезанные перпендикулярно полярной оси. Полярные поверхности облучались импульсами УФ-излучения (длина волны 308 nm, длительность импульса 25 ns) с помощью эксимерного газового лазера LGE-4, созданного в Лаборатории квантовой электроники Института электрофизики УрО РАН. Диаметр облучаемой области составлял около 3 mm. Плотность энергии изменялась от 0.5 до 1.5 J/cm<sup>2</sup>.

Визуализация доменной структуры, выявленной селективным химическим травлением (НВ, 10–30 min при комнатной температуре), проводилась с помощью оптического микроскопа (Olympus BX51) и сканирующего зондового микроскопа (Explorer, ThermoMicroscopes) в контактной моде.

Исследования показали качественное отличие поверхностных доменных структур, возникающих после облучения различных полярных поверхностей [4,5]. На поверхности  $Z^+$  в результате облучения формируются сложные структуры, тип которых существенно зависит



**Рис. 1.** Основные виды поверхностных доменных структур на поверхности НЛ. Оптическая микроскопия.

от плотности энергии, тогда как на поверхности  $Z^-$  образуются только изолированные домены.

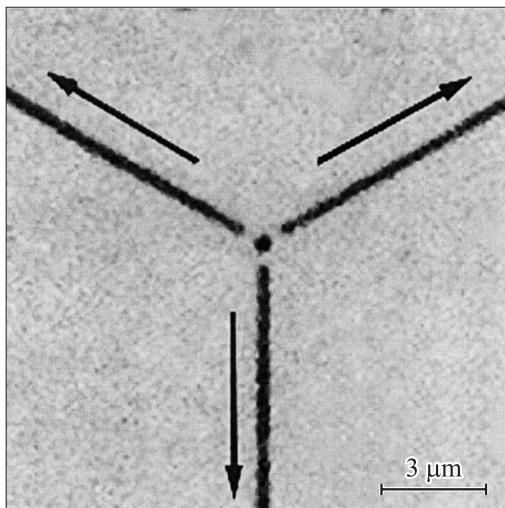
Систематический анализ изображений на поверхности  $Z^+$  позволил выделить три типа поверхностных структур (рис. 1).

1) „Изолированные домены“ в виде точек или коротких штрихов формируются в основном в узкой области на краю облученной зоны.

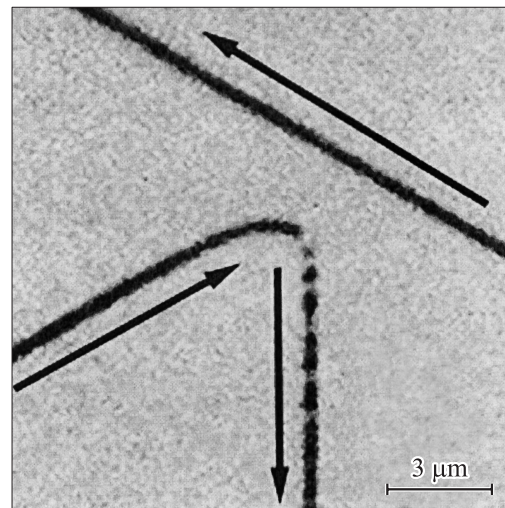
2) „Квазипериодические полосовые структуры“, состоящие из ориентированных доменных лучей, формируются внутри облученной зоны в результате роста изолированных доменов.

3) „Самоподобные структуры“ образуются внутри облученной зоны как результат взаимодействия большого числа доменных лучей.

Доменные лучи растут внутри облученной зоны от изолированного нанодомена (центра роста) вдоль трех выделенных кристаллографических  $Y$ -направлений, об-

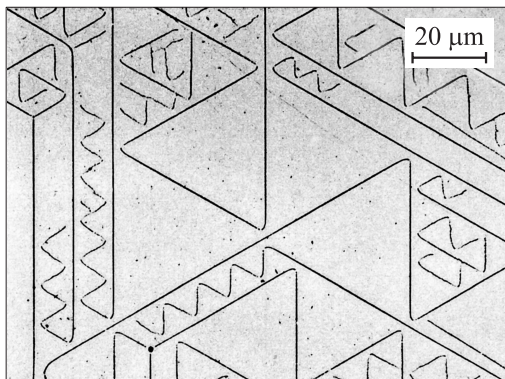


*a*

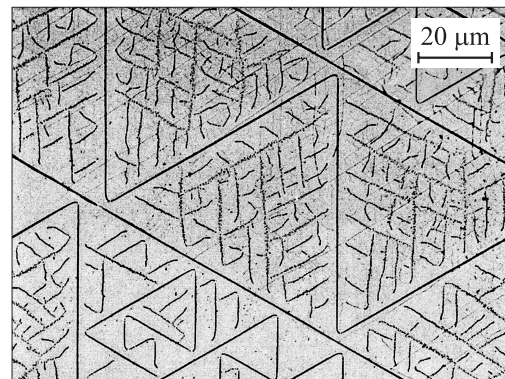


*b*

**Рис. 2.** *a*) Триплет, образующийся при росте лучей от изолированного нанодомена внутри зоны облучения. *b*) Отражение (дискретное изменение направления роста). Стрелками показаны направления роста лучей. Оптическая микроскопия.



*a*



*b*

**Рис. 3.** Самоподобные доменные структуры, образующиеся без ветвления (*a*) и при интенсивном ветвлении (*b*). Оптическая микроскопия.

разуя структуру в виде триплета (рис. 2, *a*). Образование доменов такой формы было обнаружено ранее при переключении в сильно неравновесных условиях с неэффективным экранированием деполаризующих полей [2,6]. При воздействии лазерного излучения переключение поляризации происходит без электродов, что позволяет существенно замедлить процесс экранирования.

Самоподобные структуры, состоящие из равносторонних треугольников и зигзагообразных структур, образуются в результате взаимодействия лучей, растущих от разных нанодоменов в различных направлениях (рис. 3, *a*). Доменный луч распространяется вдоль выделенного *Y*-направления, пока не приблизится на характерное расстояние взаимодействия к лучу, ориентированному вдоль другого *Y*-направления. В результате взаимодействия происходит „отражение“, при котором изменяется направление роста (поворот на 120°) (рис. 2, *b*). Расстояние взаимодействия воспроизводимо во всей облученной области.

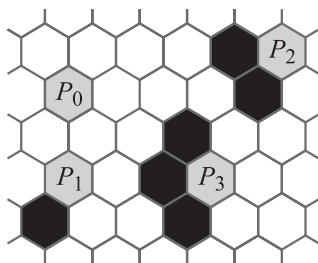
При достаточно больших интенсивностях лазерного излучения дополнительно происходит „ветвление“, при котором из существующего луча растет луч следующего поколения. Новые ветви заполняют пространство внутри треугольников, образованных лучами предыдущих поколений (рис. 3, *b*).

### 3. Модель

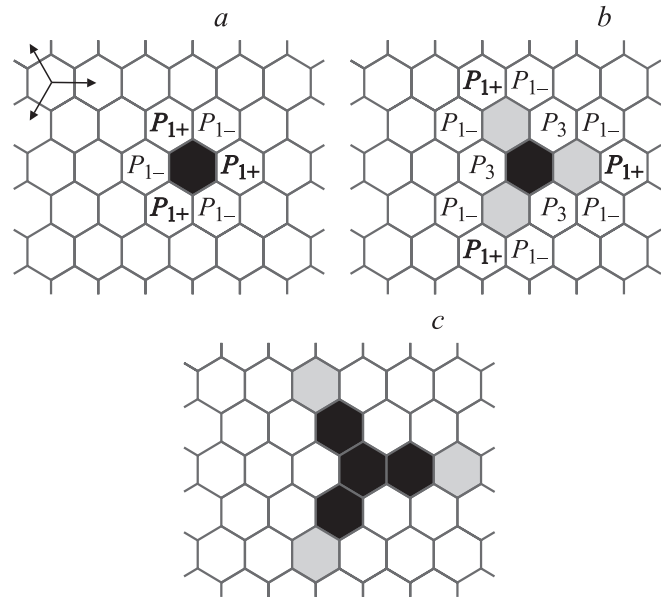
Для описания формирования самоподобных доменных структур в НЛ с симметрией  $C_3$  при переключении в сильно неравновесных условиях была предложена двумерная кинетическая модель. Поверхность образца разбивалась на гексагональные ячейки (рис. 4), каждая из которых существует в одном из двух состояний, различающихся направлением поляризации.

Следует отметить, что рассматриваемые ячейки представляют собой зародыши доменов, а не элементарные ячейки, что позволяет пользоваться представлениями о макрополях, определяющих вероятности переключения (изменения состояния ячеек).

В начальном монодоменном состоянии часть ячеек  $N_0$  переключена, что соответствует существованию



**Рис. 4.** Зависимость вероятности переключения поляризации от числа ближайших соседей. Белым показаны непереключенные ячейки, черным — ранее переключенные, серым — вновь переключаемые.



**Рис. 5.** Механизм роста лучей вдоль выделенных *Y*-направлений, показанных стрелками. *a-c* — последовательные стадии роста.

остаточных доменов, которые служат центрами роста. Вероятность переключения ячейки, не имеющей переключенных ближайших соседей, равна нулю. Вероятность переключения ячейки уменьшается с ростом числа переключенных ближайших соседей. Для переключения в сильно неравновесных условиях выполняется следующее соотношение между вероятностями переключения  $P_i$  для ячеек с различным числом ранее переключенных ближайших соседей  $i$  (рис. 4):

$$P_1 \gg P_2. \tag{1}$$

Для объяснения полученных экспериментальных результатов можно пренебречь вероятностями переключения для ячеек с числом ранее переключенных ближайших соседей более двух.

Для учета анизотропии роста предполагалось, что вероятность переключения ячейки с одним переключенным соседом, ориентированной относительно соседа в *Y*-направлении ( $P_+$ ), больше, чем вероятность переключения ячейки, ориентированной в противоположном направлении ( $P_i$ ) (рис. 5, *a*),

$$P_{1+} \gg P_{1-} \gg P_2. \tag{2}$$

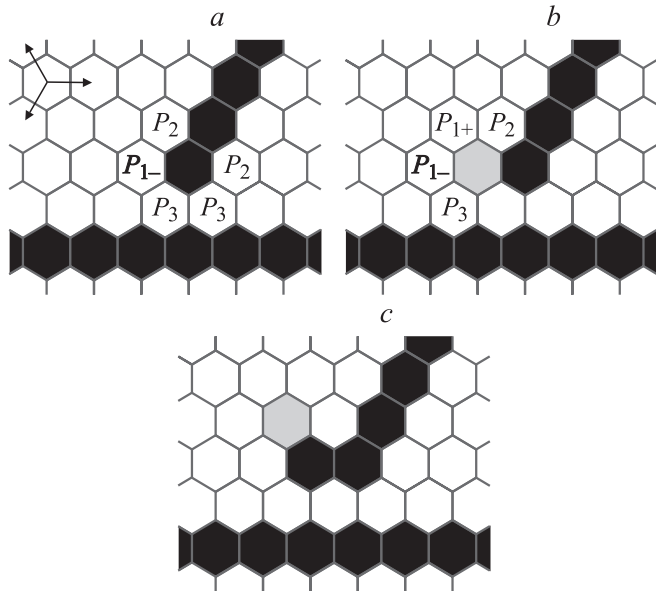
Предложенное соотношение вероятностей позволяет моделировать все особенности кинетики переключения: рост, ветвление и отражение лучей.

1) **Рост.** Ориентированный рост доменных лучей в трех выделенных *Y*-направлениях характеризуется вероятностью  $P_{1+}$  (рис. 5).

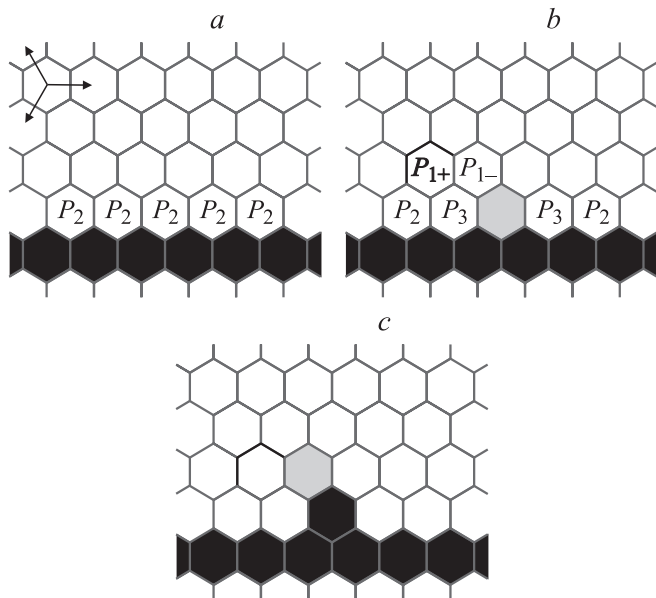
2) **Отражение.** При  $N_0 > 1$  прямолинейный рост доменного луча станет невозможным, если на его пути

встретится луч, выросший из другого центра роста (рис. 6). Согласно выражению (2), отражение луча происходит в два этапа. Слияние лучей невозможно ( $P_3 = 0$ ), поэтому рост луча в  $Y_+$ -направлении прекратится (рис. 6, *a*). Конечная вероятность роста вдоль  $Y_-$  ( $P_{1-} \gg P_2$ ) позволит изменить направление роста (рис. 6, *b*). Затем луч изменит направление  $Y_-$  на  $Y_+$ , поскольку  $P_{1+} \gg P_{1-}$  (рис. 6, *c*).

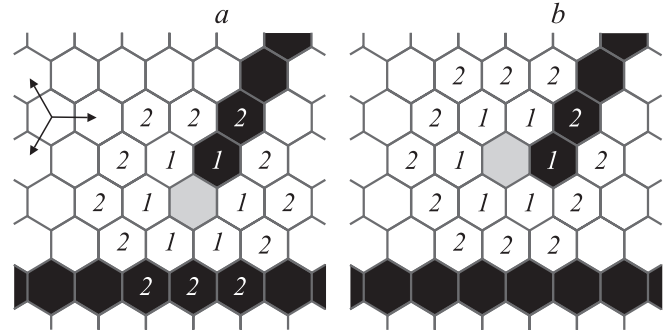
3) Ветвление. С конечной вероятностью  $P_2$  может переключиться ячейка, имеющая два переключенных



**Рис. 6.** Отражение луча. Стрелками обозначены выделенные  $Y$ -направления.



**Рис. 7.** Механизм ветвления лучей. Стрелками обозначены выделенные  $Y$ -направления.



**Рис. 8.** Отражение лучей при учете дальнего действия. 1 — ближайшие соседи, 2 — „вторые“ соседи.

ближайших соседа, что приводит к росту луча нового поколения (рис. 7, (*a-c*)).

4) Учет дальнего действия. В предложенной модели при расчете вероятности переключения учитывалось состояние только ближайших соседей. Для учета дальнего действия можно учесть состояние вторых ближайших соседей (рис. 8). При этом механизм роста доменного триплета не изменится.

Рассмотрим влияние дальнего действия на механизм отражения доменных лучей (рис. 8). Вероятность отражения луча на расстоянии в одну ячейку (рис. 8, *a*), соответствует вероятности переключения ячейки с четырьмя переключенными вторыми ближайшими соседями, а на расстоянии в две ячейки (рис. 8, *b*) — вероятности переключения с одним переключенным вторым ближайшим соседом. Поскольку увеличение числа ближайших соседей уменьшает вероятность переключения, отражение происходит на расстоянии в две ячейки (рис. 8, *b*). Очевидно, что учет влияния более удаленных соседей приводит к росту расстояния взаимодействия  $d_{\text{int}}$  (расстояние между отраженным и отражающим лучами).

Кроме того, учет дальнего действия накладывает ограничение на расстояние между ближайшими ветвлениями и приводит к тому, что расстояние между ветвями не может быть меньше  $d_{\text{int}}$ .

## 4. Результаты моделирования

С помощью описанной выше модели было проведено моделирование кинетики формирования доменной структуры в сильно неравновесных условиях. Размер матрицы изменялся от  $10^2 \times 10^2$  до  $10^5 \times 10^5$  ячеек. Были выбраны периодические граничные условия. Моделировался рост как с ветвлением ( $P_2 > 0$ ), так и без ветвления ( $P_2 = 0$ ). Расстояние взаимодействия  $d_{\text{int}}$  варьировалось.

Доменные структуры, полученные в рамках описанной выше модели (рис. 9), качественно совпадают с поверхностными доменными структурами, полученными при лазерном облучении поверхности НЛ (рис. 3). В обоих

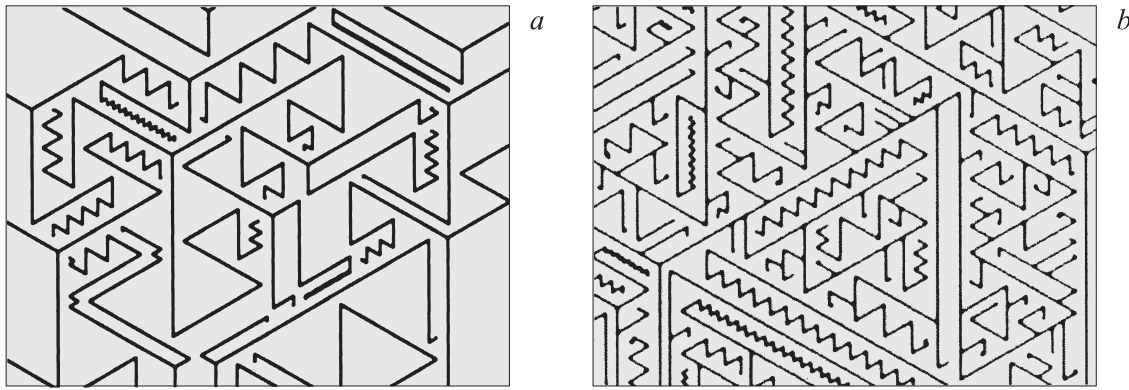


Рис. 9. Доменные структуры, полученные моделированием без учета ветвления,  $P_2 = 0$  (a), и с учетом ветвления,  $P_2 > 0$  (b).

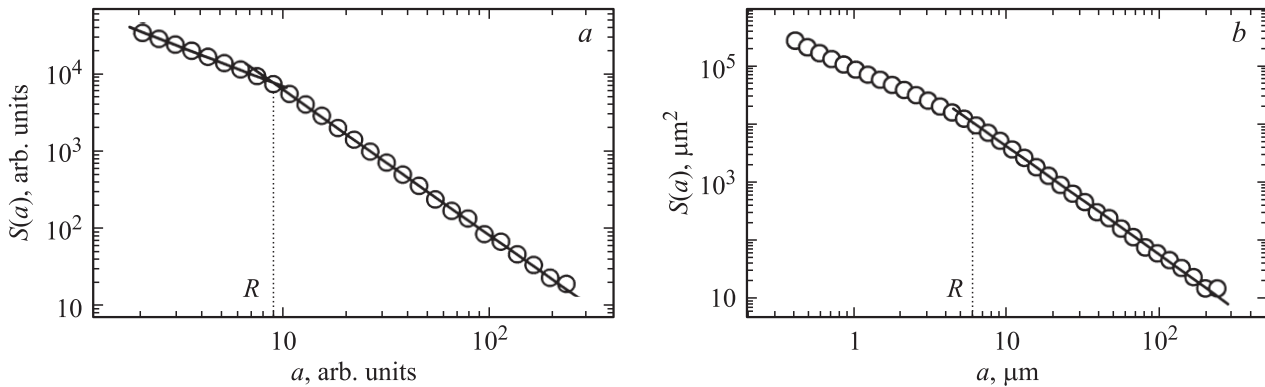


Рис. 10. Фрактальный анализ доменной структуры. a — моделирование, b — эксперимент. Зависимости  $S(a)$  аппроксимированы формулой (3). Матрица  $2000 \times 2000$  ячеек,  $P_2 > 0$ ,  $N_0 = 5$ ,  $d_{\text{int}} = 10$ .

случаях вид доменной структуры качественно изменялся при учете ветвления.

При отсутствии ветвления ( $P_2 = 0$ ) плотность доменной структуры увеличивается при увеличении количества центров роста  $N_0$  и уменьшении расстояния взаимодействия  $d_{\text{int}}$ . При учете ветвления ( $P_2 > 0$ ) и периодических граничных условиях плотность структуры резко возрастает.

4.1. Фрактальный анализ. Для анализа полученных самоподобных доменных структур использовался фрактальный формализм. Фрактальная размерность и диапазон скейлинга (самоподобия) определялись методом box-counting [7]. Для этого проводилось скейлинговое преобразование — матрица разбивалась на прямоугольные области размера  $a$  и определялась суммарная площадь  $S$  областей, покрывающих исследуемую доменную структуру. Для самоподобных объектов должно выполняться соотношение

$$S(a) \sim a^{-D}, \quad (3)$$

где  $D$  — размерность подобия. Диапазон размеров, в котором выполняется (3), называется диапазоном скейлинга. Объект можно назвать фрактальным, если  $D$

строго больше топологической размерности, а диапазон скейлинга более одного порядка [7].

Зависимость  $S(a)$  в двойном логарифмическом масштабе для доменной структуры, полученной в результате моделирования, имеет выраженный излом при  $a = R$ , соответствующий смене размерностей (рис. 10). Для масштабов, меньших  $R$ , размерность равна единице, что соответствует топологической размерности линий, из которых состоит структура. Для масштабов, больших  $R$ , размерность  $D = 1.87$ . В результате анализа доменных структур, полученных для широкого диапазона параметров системы, обнаружено, что величина  $R$  практически совпадает с расстоянием взаимодействия  $d_{\text{int}}$  (рис. 11, a).

При отсутствии ветвления ( $P_2 = 0$ ) размерность  $D$  растет с увеличением числа центров роста  $N_0$  и уменьшением расстояния взаимодействия  $d_{\text{int}}$  (рис. 11, b), так как структура более полно заполняет пространство.

Таким образом, нами показано, что полученные доменные структуры являются фрактальными объектами и нижний предел диапазона скейлинга (lower scaling cutoff) равен расстоянию взаимодействия между лучами  $d_{\text{int}}$ .

Фрактальный анализ экспериментальных данных (рис. 11, b) показал самоподобность таких поверхност-

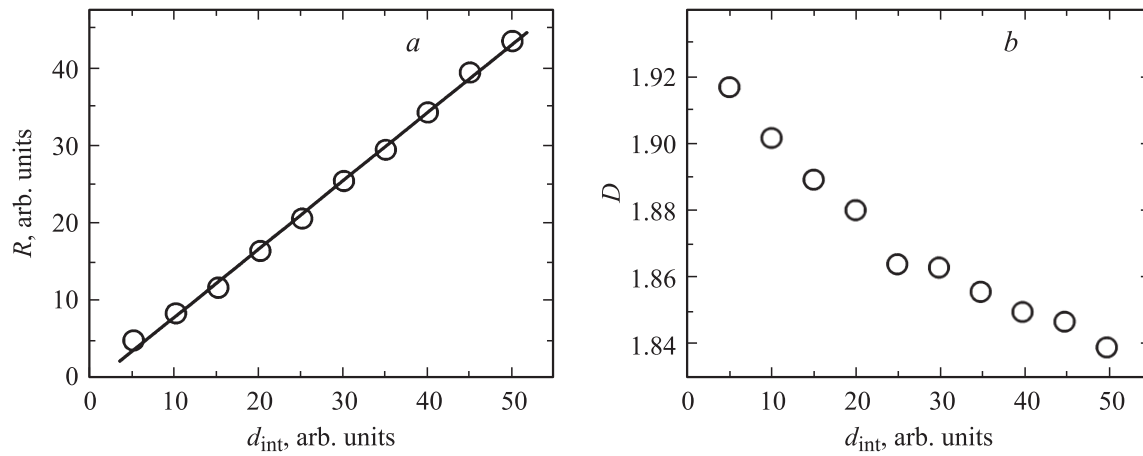


Рис. 11. Зависимость  $R$  (a) и  $D$  (b) от расстояния взаимодействия. Матрица  $2000 \times 2000$  ячеек,  $P_2 > 0$ ,  $N_0 = 5$ .

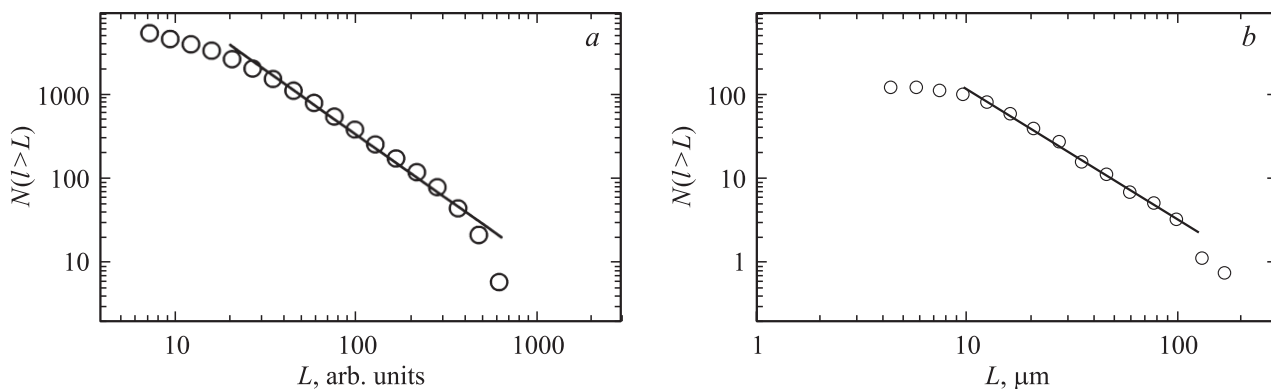


Рис. 12. Сравнение кумулятивных функций распределения сегментов по длинам для результатов моделирования (a) и экспериментальных данных (b). Матрица  $2000 \times 2000$ , рост с ветвлением,  $N_0 = 5$ . Аппроксимация зависимостью (4).

ных доменных структур в диапазоне от 6 до  $110 \mu\text{m}$ . Фрактальная размерность структуры (рис. 3, a) равна 1.8.

4.2. Статистический анализ. Для проведения статистического анализа был использован другой вариант скейлингового анализа. Каждый луч, являющийся составной частью доменной структуры, разбивался на прямолинейные участки (сегменты). Строилась кумулятивная функция распределения сегментов по длине, где каждому значению длины  $L$  ставилось в соответствие число сегментов с длиной, большей или равной  $L$ . При этом для самоподобных структур должно выполняться соотношение

$$N(l > L) \sim L^{-C}. \quad (4)$$

На рис. 12 приведены результаты статистической обработки экспериментальных данных (рис. 12, a) и результатов моделирования (рис. 12, b). В обоих случаях соотношение (4) выполняется в достаточно большом диапазоне длин сегментов, показатель скейлинга  $C$ , определенный по формуле (4), равен 1.54 для экспериментальной и 1.52 для модельной доменной структуры с учетом ветвления.

Следует отметить, что диапазон скейлинга растет с увеличением размеров области, занимаемой структурой. На рис. 13 приведены результаты моделирования на матрице  $10^5 \times 10^5$  ячеек для случая отсутствия ветвления.

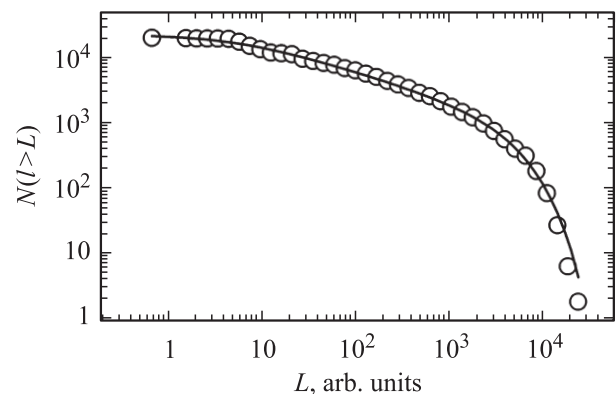


Рис. 13. Кумулятивная функция распределения сегментов по длинам для результатов моделирования без ветвления. Аппроксимация функцией (5),  $C = 0.44$ ,  $L_0 = 6000$ . Матрица  $10^5 \times 10^5$ .

Полученная зависимость аппроксимировалась модифицированной формулой (4) с учетом верхнего ограничения диапазона скейлинга (upper scaling cutoff)

$$N(l > L) \sim L^{-c} \exp(-L/L_0), \quad (5)$$

где  $L_0$  соответствует верхнему пределу диапазона скейлинга (cutoff factor).

## 5. Заключение

Самоподобные поверхностные доменные структуры, образовавшиеся в результате импульсного лазерного облучения в конгруэнтных кристаллах НЛ и состоящие из нанодоменных лучей, исследованы методами оптической и сканирующей зондовой микроскопии. На основании экспериментально определенных правил роста доменных лучей предложена оригинальная модель формирования самоподобных доменных структур при переключении в сильно неравновесных условиях. Для их качественного описания был использован фрактальный и статистический анализ. Статистические параметры доменных структур, полученных моделированием и наблюдаемых экспериментально, количественно совпадают.

## Список литературы

- [1] V.Ya. Shur, E.L. Romyantsev, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, D.V. Fursov, R.G. Batchko, L.A. Eyres, M.M. Fejer, R.L. Byer. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 143 (2000).
- [2] V.Ya. Shur. In: *Nucleation theory and applications* / Ed. J.W.P. Schmelzer. WILEY-VCH, Weinheim (2005). P. 178.
- [3] C.E. Valdivia, C.L. Sones, J.G. Scott, S. Mailis, R.W. Eason, D.A. Scrymgeour, V. Gopalan, T. Jungk, E. Soergel, I. Clark. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 022 906 (2005).
- [4] V.Ya. Shur, D.K. Kuznetsov, A.I. Lobov, E.V. Nikolaeva, M.A. Dolbilov, A.N. Orlov, V.V. Osipov. *Ferroelectrics* **341**, 85 (2006).
- [5] A. Lobov, V. Shur, D. Kuznetsov, E. Shishkin, A. Shur, I. Baturin, M. Dolbilov, K. Gallo. *Ferroelectrics* **341**, 109 (2006).
- [6] A.P. Chernykh, V.Ya. Shur, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, A.G. Shur, K. Terabe, S. Kurimura, K. Kitamura, K. Gallo. *Mater. Sci. Eng. B* **120**, 109 (2005).
- [7] J. Feder. *Fractals*. Plenum Press, N.Y. (1988).