

Министерство науки и высшего образования Российской Федерации
Федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования «Уральский федеральный университет
имени первого Президента России Б.Н.Ельцина»

№ госрегистрации 121111600094-6

УТВЕРЖДАЮ

Проректор по науке УрФУ

Германенко А.В.

“ 27 ” января 2024 г.

ОТЧЕТ
ОБ ИССЛЕДОВАНИЯХ

Сегнетоэлектрические кристаллы
с регулярной доменной структурой для оптоэлектроники

(итоговый)

Этап 3

Мероприятие 4.3.2. Проведение исследований в рамках международного
многостороннего и двустороннего сотрудничества, в том числе в
рамках Европейского союза

Соглашение о предоставлении субсидии от 13 октября 2021 г. № 13.2251.21.0101
с дополнительными соглашениями от 29 марта 2022 г., от 15 апреля 2022 г.,
от 01 мая 2022 г., от 01 сентября 2022 г., от 06 сентября 2023 г.,
от 13 ноября 2023 г.

Руководитель проекта
главный научный сотрудник,
д. ф.-м. н., профессор

27.01.24 Шур В.Я.

(подпись, дата)


Екатеринбург 2023



СПИСОК ИСПОЛНИТЕЛЕЙ

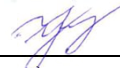
Руководитель проекта, главный научный сотрудник, д.ф.-м.н., профессор	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Шур В.Я. (разделы 1-4,6 введение, заключение)
младший научный сотрудник, аспирант	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Абрамов А.С. (раздел 1)
младший научный сотрудник, к.ф.-м.н.	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Грешняков Е.Д. (раздел 1)
старший научный сотрудник, к.ф.-м.н.	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Зеленовский П.С. (раздел 1)
стажер-исследователь, аспирант	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Кипенко И.А. (раздел 3)
инженер,	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Конев М.В. (раздел 4)
инженер,	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Куминов В.П. (разделы 2)
лаборант-исследователь	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Линкер Э.А. (раздел 3,4)
младший научный сотрудник, аспирант	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Лисьих Б.И. (раздел 3)
лаборант-исследователь	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Макарова С.А. (раздел 1)
стажер-исследователь, аспирант	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Пашнина Е.А. (раздел 2)
лаборант-исследователь,	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Сафина В.А. (раздел 2)
научный сотрудник, к.ф.-м.н.	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Турыгин А.П. (раздел 3)
младший научный сотрудник, к.ф.-м.н.	<u>27.01.24</u>  (подпись, дата)	Ушаков А.Д. (раздел 1-4)

Заведующий лабораторией
к.ф.-м.н.

27.01.24 
(подпись, дата)


Холкин А.Л.
(раздел 1,2)

младший научный сотрудник,
к.ф.-м.н.

27.01.24 
(подпись, дата)

Чувакова М.А.
(раздел 3,4)

нормоконтролер

27.01.24 
(подпись, дата)

Важенин В.А.

РЕФЕРАТ

Отчет 39 с., 17 рисунков, 3 таблицы, 42 источника.

СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ДОМЕННАЯ СТРУКТУРА, ОПТИЧЕСКАЯ МИКРОСКОПИЯ, СИЛОВАЯ МИКРОСКОПИЯ ПЬЕЗООТКЛИКА, СКАНИРУЮЩАЯ ЗОНДОВАЯ МИКРОСКОПИЯ

Целью проекта является разработка методов создания стабильной регулярной и каскадной доменных структур в кристаллах семейства релаксорного сегнетоэлектрика PMN-PT на основе результатов исследований эволюции доменной структуры в неоднородном электрическом поле и изготовление прототипов преобразователей частоты излучения с регулярной доменной структурой и каскадных оптических дефлекторов.

На третьем этапе выполнения проекта получены следующие основные результаты:

1. Изготовлены прототипы преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой методом облучения электронным пучком и приложением поля с помощью гребневых электродов.

2. Измерены параметры прототипов преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой. Максимальная полученная приведенная эффективность преобразования в образце с периодом 14,5 мкм для *oo-e* преобразования 4-го порядка составила $6 \cdot 10^{-2} \%$ /(Вт·см).

3. Изготовлены прототипы каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения с заданной стабильной доменной структурой на основе кристаллов PMN-PT и ниобата лития.

4. При изготовлении прототипов преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники и каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов PMN-PT использовалась фиксация полярных поверхностей образцов с целью снижения вероятности образования сегнетоэластических доменов и разрушения образца. Данное техническое решение было представлено в качестве заявки на получение патента.

5. Измерены параметры прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения с заданной стабильной доменной структурой на основе кристаллов семейства PMN-PT и ниобата лития. Показано, что отклоняющая способность для прототипов на основе PMN-PT составила $2,5 \cdot 10^{-4}$ град/В/мм, а для ниобата лития $3,9 \cdot 10^{-4}$ град/В/мм.

Проект выполнялся совместно с иностранным партнером – группой Международного центра исследований диэлектриков Сианьского транспортного университета (Xi'an Jiaotong University), возглавляемой профессором Xiaoyong Wei. В соответствии с соглашением о предоставлении субсидии от 13 октября 2021 г. № 13.2251.21.0101 иностранным партнером на третьем этапе получены следующие результаты:

1. Изготовлены прототипы преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов PMN-PT, вырезанных перпендикулярно [110] и находящихся в ромбоэдрической фазе, с регулярной доменной структурой с периодом 24 мкм.

2. Показано, что особенности кристаллов PMN-PT не позволяют создать необходимую каскадную доменную структуру методом, разработанным для создания оптических дефлекторов с каскадной доменной структурой на основе кристаллов конгруэнтного ниобата лития.

3. Измерены параметры прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой. Отклоняющая способность прототипа на основе PMN-PT составила 0,25 град/В/мкм.

СОДЕРЖАНИЕ

Введение.....	7
1 Работы, выполненные на предыдущих этапах НИР	10
2 Работы, выполненные на третьем этапе НИР получателем гранта	16
2.1 Изготовление прототипов преобразователя частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой	16
2.1.1 Подготовка пластин для создания регулярной доменной структуры	16
2.1.2 Создание регулярной доменной структуры облучением электронным пучком	17
2.1.3 Создание регулярной доменной структуры переключением поляризации с помощью гребневых твердотельных электродов.....	18
2.2 Тестирование прототипов преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой	21
2.3 Изготовление прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой	23
2.3.1 Создание прототипов каскадных оптических дефлекторов на основе PMN-PT.....	24
2.3.2 Создание прототипов каскадных оптических дефлекторов на основе CLN	25
2.4 Тестирование прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой	28
3 Работы, выполненные на третьем этапе НИР иностранным партнером.	30
3.1 Изготовление прототипов преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой	30
3.2 Изготовление прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой	31
3.3 Тестирование прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой	32
4 Обобщение результатов	34
Заключение.....	36
Список использованных источников.....	37

ВВЕДЕНИЕ

Сегнетоэлектрические кристаллы с регулярной доменной структурой в настоящее время активно используются для преобразования частоты лазерного излучения [1]. Благодаря нелинейным оптическим эффектам второго порядка (генерации второй гармоники, параметрической генерации света и генерации разностной частоты) технология преобразования частоты используется в оптической коммуникации, оптической визуализации, оптической памяти и дистанционном зондировании [2].

В 1962 году было показано, что эффективность преобразования частоты излучения может быть существенно повышена в нелинейно-оптической среде с периодическим изменением знака нелинейно-оптических коэффициентов [3]. В качестве такой среды было предложено использовать сегнетоэлектрические кристаллы с регулярной доменной структурой [3]. В настоящее время изготовление преобразователей частоты с регулярной доменной структурой стало экономически привлекательным. Отработаны технологии получения регулярной доменной структуры в кристаллах ниобата лития (PPLN) [4], танталата лития (PPLT) [5], дигидрофосфата калия (PPKTP) [6] и бор-германата лантана (PPLBGO) [7]. Преобразователи частоты используются, в частности, в устройствах квантовой связи [8] и источниках терагерцовых импульсов [9].

Релаксорные сегнетоэлектрические кристаллы на основе твердого раствора магнониобата-титаната свинца $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ (PMN-PT) представляют собой перспективный функциональный материал [10–12]. К семейству PMN-PT относят также кристаллы $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3-\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3$ (PIN-PMN-PT), которые обладают улучшенными функциональными характеристиками: повышенными, по сравнению с PMN-PT, значениями коэрцитивных полей и температуры Кюри [13].

В последние годы, благодаря совершенствованию методов выращивания кристаллов семейства PMN-PT, появилась возможность использовать их выдающиеся оптические и нелинейно-оптические характеристики [14–16]. Показано, что обработка кристаллов семейства PMN-PT переменным электрическим полем позволяет достичь величины оптического пропускания сравнимой с кристаллами ниобата лития [16, 17]. При этом эффективный электрооптический коэффициент PMN-PT выше, чем у ниобата лития [14]. Полученные результаты позволяют рассматривать кристаллы семейства PMN-PT как перспективные материалы для создания преобразователей частоты лазерного излучения методами генерации второй гармоники. Следует отметить, что в кристаллах семейства PMN-PT невозможно реализовать условие фазового синхронизма, поэтому эффективное преобразование частоты может быть получено только при реализации условия фазового

квази-синхронизма [16]. Однако, до сих пор не проводились детальные исследования кинетики доменов в кристаллах PMN-PT различного состава под действием неоднородного электрического поля, которые необходимы для создания стабильной прецизионной регулярной доменной структуры.

Для визуализации доменной структуры [18], определения фазового состава при различных температурах [19], анализа однородности монодоменного состояния [20] и индуцированных внешним электрическим полем фазовых переходов в кристаллах семейства PMN-PT [21] обычно используют оптическую поляризационную микроскопию, которая позволяет лишь качественно характеризовать доменную структуру в объеме [22].

Создание регулярных доменных структур в кристаллах семейства PMN-PT затруднено многообразием доменных структур, вызванным сосуществованием фаз [23–25], и наличием заряженных доменных стенок [26–29]. Поэтому для создания кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой требуется проведение дополнительных исследований для оптимизации условий роста кристаллов и развития методов доменной инженерии. В частности, необходимо контролировать процесс формирования сегнетоэластических доменов, которые значительно уменьшают эффективность преобразования частоты излучения.

Отсутствие технологии выращивания высококачественных однородных кристаллов и метода создания регулярной доменной структурой не позволяет применять кристаллы семейства PMN-PT в оптоэлектронных устройствах. Для решения этой проблемы было реализовано сотрудничество между китайскими и российскими группами, которые являются мировыми лидерами в данном направлении: лаборатория профессора Шура В. Я. из Уральского федерального университета и Международного центра исследования диэлектриков профессора Xiaoyong Wei из Сианьского транспортного университета (Xi'an Jiaotong University), Китай, которые получили ряд результатов международного уровня в результате проведения совместных исследований, направленных на изучение доменной структуры в кристаллах семейства PMN-PT. Для создания регулярных доменных структур в полной мере использовались достижения китайской группы в выращивании кристаллов и российской группы в исследовании кинетики доменной структуры и создании регулярных доменных структур.

Для достижения цели совместных исследований на третьем этапе проекта решались следующие конкретные задачи:

1. Изготовление прототипов преобразователя частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой (российская и китайская стороны).

2. Тестирование прототипов преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой (российская сторона).

3. Изготовление прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой (российская и китайская стороны).

4. Тестирование прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой (российская и китайская стороны).

Проект выполнялся совместно с иностранным партнером – группой Международного центра исследований диэлектриков Сианьского транспортного университета (Xi'an Jiaotong University), возглавляемой профессором Xiaoyong Wei. Научная группа имеет более чем двадцатилетний опыт исследований кристаллов релаксорных сегнетоэлектриков, в том числе, уникальный опыт выращивания и механической обработки высококачественных монокристаллов семейства PMN-PT. Данной группой освоен и развит модифицированный метод Бриджмена для выращивания кристаллов бинарных и тройных систем.

1 Работы, выполненные на предыдущих этапах НИР

Обобщение результатов первого этапа

В результате выполнения исследований по первому этапу проекта получены следующие основные результаты

1. Анализ оптических изображений мгновенных доменных конфигураций при переключении поляризации в растущем поле в монокристаллах магнониобата-титаната свинца составов $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ (PMN-PT) с долей титаната свинца $x = 37,6\%$ позволил выделить два типа эволюции доменной структуры: (1) двухэтапное 90-градусное переключение при температурах ниже 183°C ; (2) двухэтапное 90-градусное переключение, происходящее одновременно со 180-градусным переключением, при температурах от 183 до 186°C .

2. Выявлено формирование и встречное движение ориентированных плоских фазовых границ, при охлаждении из параэлектрической фазы. Продемонстрировано формирование заряженной доменной стенки.

3. Проведены систематические измерения петель диэлектрического гистерезиса при переключении поляризации в диапазоне температур от 25 до 186°C . Получены температурные зависимости коэрцитивного поля и остаточной поляризации.

4. Продемонстрирована возможность использования конфокальной микроскопии комбинационного рассеяния и микроскопии генерации второй гармоники для визуализации доменной структуры в объеме кристаллов PMN-PT.

5. Выявлены закономерности прорастания доменов в $[001]$ полярном направлении на (100) неполярном срезе кристалла PMN-PT а также закономерности взаимодействия растущих доменов при локальном переключении зондом сканирующего зондового микроскопа.

Полученные результаты полностью соответствуют поставленным требованиям и находятся на мировом уровне. Достоверность полученных результатов обеспечивается применением современного и надежного аттестованного оборудования, надежной статистикой экспериментов, применением современных и независимых методов обработки данных, согласием с результатами других авторов и непротиворечивостью известным физическим моделям.

Заключение первого этапа

Российской стороной на первом этапе выполнения проекта получены следующие основные результаты:

1) С помощью оптической микроскопии, дополненной возможностью одновременной регистрации тока переключения, выявлены характерные особенности и выделены два типа эволюции доменной структуры в монокристаллических пластинах PMN-PT, находящихся в тетрагональной фазе и вырезанных перпендикулярно [001], при переключении поляризации электрическим полем вдоль [001] в диапазоне температур от 25 до 186 °С. Для указанного температурного диапазона также получены петли диэлектрического гистерезиса.

2) Методом силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика выявлены особенности формирования прорастания доменов в полярном направлении на неполярной поверхности (100) в монокристаллических пластинах монокристаллов PMN-PT, находящихся в тетрагональной фазе и вырезанных перпендикулярно [100]. Получены зависимости размеров доменов от параметров переключающего импульса при локальном переключении поляризации на неполярном срезе.

3) С помощью метода силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика получена зависимость от расстояния между точками приложения электрического поля размеров доменов, растущих в полярном направлении и созданных приложением переключающих импульсов к проводящему зонду сканирующего зондового микроскопа на неполярной поверхности (100) пластин монокристаллов PMN-PT, находящихся в тетрагональной фазе и вырезанных перпендикулярно [100].

Иностраным партнером на первом этапе получены следующие результаты:

1) С помощью модифицированного метода Бриджмена выращен монокристалл PIN-PMN-PT с повышенной однородностью химического состава.

2) С использованием методов механической и термической обработки из выращенного монокристалла PIN-PMN-PT изготовлены пластины оптического качества.

3) Пластины PIN-PMN-PT монодоменизированы охлаждением в постоянном электрическом поле. Измерена зависимость коэффициента пропускания от длины волны излучения. Показано, что в диапазоне длин волн от 0,5 до 2,5 мкм коэффициент пропускания достигает 70%, что близко к предельному значению с учетом отражения от поверхности.

Все задачи, поставленные на первый этап проекта, выполнены в полном объеме.

Обобщение результатов второго этапа

В результате выполнения исследований по первому этапу проекта получены следующие основные результаты

1. Выявлены особенности динамики сегнетоэлектрических и сегнетоэластических доменных границ при локальном переключении в пластинах PMN-0,38PT с ромбоэдрической симметрией, вырезанных перпендикулярно [111] с визуализацией доменной структуры с помощью оптической микроскопии и сканирующей микроскопии пьезоэлектрического отклика. Выявлена зависимость кинетики доменов от относительной влажности (RH). Показано, что при $RH > 40\%$ образуются только *c*-домены, а при $RH < 40\%$ смесь *a*- и *c*-доменов. Различие кинетики объяснено уменьшением механического напряжения при образовании *c*-доменов.

2. Показана возможность образования только *c*-доменов при переключении поляризации в PMN-0,38PT при повышенной температуре с использованием механической фиксации полярных поверхностей, затрудняющей образование *a*-доменов.

3. Показано, что при сканировании электронным пучком покрытой диэлектрическим слоем полярной поверхности пластин PMN-0,38PT и PIN-PMN-0,38PT формируются полосовые доменные структуры со 180-градусными стенками. Выявлены эффекты потери стабильности формы полосовых доменов и разбиения на изолированные домены в объеме. Измерена зависимость глубины, до которой сохраняется полосовая структура, от дозы облучения для различных направлений сканирования.

4. Разработана методика создания регулярной доменной структуры в пластинах PMN-0,38PT с периодом менее 50 мкм приложением поля с помощью периодической системы электродов. Глубина структуры составляет около 100 мкм.

5. Впервые показано, что движение плоской фазовой границы при охлаждении из параэлектрической фазы с ориентированным градиентом температуры, приводит к созданию в PMN-0,38PT квазирегулярной доменной структуры с периодом около 400 нм.

6. Разработана методика контроля эффективности генерации второй гармоники, позволяющая тестировать большое количество элементов и сохранять полученную информацию в структурированном виде.

7. Разработаны и апробированы методики создания каскадной доменной структуры с переменным периодом и контроля эффективности отклонения луча на примере PMN-0,38PT.

Полученные результаты полностью соответствуют поставленным требованиям и находятся на мировом уровне. Достоверность полученных результатов обеспечивается применением современного и надежного аттестованного оборудования, надежной статистикой экспериментов, применением современных и независимых методов обработки

данных, согласием с результатами других авторов и непротиворечивостью известным физическим моделям.

Заключение второго этапа

Полученные результаты полностью соответствуют поставленным требованиям и находятся на мировом уровне. Достоверность полученных результатов обеспечивается применением современного и надежного аттестованного оборудования, надежной статистикой экспериментов, применением современных и независимых методов обработки данных, согласием с результатами других авторов и непротиворечивостью известным физическим моделям.

Российской стороной на втором этапе выполнения проекта получены следующие основные результаты:

1. Показана возможность управления процессом переключения с помощью различных уровней относительной влажности (RH) в монокристаллах магнониобата-титаната свинца составов $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ (PMN-PT) с долей титаната свинца $x = 28\%$, имеющих ромбоэдрическую симметрию при комнатной температуре и вырезанных перпендикулярно $[111]$. При $\text{RH} > 40\%$ переключение приводит к образованию только c -доменов, а при $\text{RH} < 40\%$ наблюдается образование смеси a - и c -доменных структур. Различие кинетики объяснено за счёт образования c -доменов, препятствующих дальнейшему переключению a -доменов из-за снятия механического напряжения.

2. Продемонстрирована возможность формирования только c -доменов при переключении поляризации в PMN-0,38PT при повышенной температуре с использованием механической фиксации полярных поверхностей, затрудняющей образование a -доменов.

3. Показано, что при облучении электронным пучком $(00\bar{1})$ поверхности монокристаллических пластин PMN-0,38PT и PIN-PMN-0,38PT, покрытой диэлектрическим слоем фоторезиста, формируются полосовые доменные структуры со 180-градусными стенками. Выявлены эффекты потери стабильности формы и разбиения на изолированные домены в объеме. Выявлена зависимость глубины, на которой происходит разбиение полосовой структуры на изолированные домены, от дозы облучения и направления сканирования электронным пучком.

4. Разработана методика создания регулярной доменной структуры в пластинах PMN-0,38PT с периодом менее 50 мкм приложением поля с помощью периодической системы электродов. Глубина структуры составляет около 100 мкм.

5. Показано, что движение плоской фазовой границы при охлаждении из параэлектрической фазы с ориентированным градиентом температуры в образцах PMN-PT

с $x = 38\%$, может быть использовано для создания регулярной доменной структуры с периодом 400 нм.

6. Разработаны методы контроля эффективности генерации второй гармоники, позволяющие автоматически тестировать большое количество элементов и сохранять полученную информацию в структурированном виде.

7. Разработаны и апробированы методики создания каскадной доменной структуры с переменным периодом и контроля эффективности отклонения луча на примере образцов PMN-PT с $x = 38\%$.

Иностранном партнером на втором этапе получены следующие результаты:

1. С помощью модифицированного метода Бриджмена выращен монокристалл PMN-PT

2. С использованием методов механической и термической обработки из выращенного монокристалла изготовлены пластины PMN-PT с поверхностями оптического качества.

3. Пластины PMN-PT были монодоменизированы охлаждением в постоянном электрическом поле. Измерена зависимость коэффициента пропускания от длины волны излучения. Показано, что в диапазоне длин волн от 0,5 до 2,5 мкм коэффициент пропускания достигает 70%, что близко к предельному значению с учетом отражения от поверхности.

4. Измерены зависимости показателей преломления кристалла семейства PMN-PT от длины волны.

5. Рассчитаны значения периодов регулярной доменной структуры для генерации второй гармоники.

Все задачи, поставленные на второй этап проекта, выполнены в полном объеме.

Выполнение задач второго этапа проекта позволило впервые в значительной степени продвинуться на пути к практическому использованию кристаллов семейства PMN-PT в различных оптоэлектронных устройствах. Разработанные технологии выращивания высококачественных однородных кристаллов и изготовления монодоменных пластин, а также разработка методов создания регулярной доменной структурой, открывают возможности для изготовления элементов для преобразования частоты лазерного излучения в широком спектральном диапазоне и электрооптических дефлекторов, изготовление и тестирование которых будет проведено при выполнении работ заключительного третьего этапа проекта. Полученные результаты представляют значительный интерес для компаний производителей волоконных и полупроводниковых

лазеров. Источники когерентного излучения с высокоэффективными преобразователями частоты излучения на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой смогут найти широкое применение в промышленности, медицине, системах связи и других отраслях.

2 Работы, выполненные на третьем этапе НИР получателем гранта

2.1 Изготовление прототипов преобразователя частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой

Для изготовления прототипов преобразователя частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники использовались два метода изготовления регулярной доменной структуры: облучение электронным пучком и переключение поляризации с помощью гребневых твердотельных электродов.

Расчет периодов структуры (Таблица 1), требуемых для реализации генерации второй гармоники, был произведён китайскими партнёрами на втором этапе выполнения проекта

Таблица 1. Рассчитанные значения периодов решетки для различных порядков синхронизма и типов преобразования.

Тип преобразования	Период структуры, мкм				
	$m=3$	$m=4$	$m=5$	$m=6$	$m=7$
<i>ee-e</i>	10,40	13,86	17,33	20,79	24,25
<i>oo-e</i>	10,85	14,46	18,08	21,69	25,3

2.1.1 Подготовка пластин для создания регулярной доменной структуры

Изготовление прототипов преобразователя частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники осуществлялось на основе пластин монокристаллов $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ (PMN-PT), выращенных с помощью модифицированной методики Бриджмена [30, 31] китайскими партнёрами по проекту. Пластины толщиной 1 мм вырезались перпендикулярно [001] кристаллографической оси.

Доля титаната свинца x в исследованных образцах PMN- x PT определялась из измерений максимального значения температурной зависимости диэлектрической проницаемости [32] и составила 38% (PMN-0,38PT), что соответствует существованию тетрагональной фазы в диапазоне от 25 до 187°C. Измерения диэлектрической проницаемости образцов PMN-PT производились с помощью прецизионного измерителя иммитанса QuadTech RLC 7600 (IET Labs Inc., США). Для измерений импеданса $|Z|$ и фазы θ использовался синусоидальный сигнал напряжением $V_{RMS} = 1$ В с дискретным набором частот (1, 10, 100 кГц) в температурном диапазоне от 25 до 250°C.

Производилась полировка торцов до оптического качества, позволяющего осуществлять лазерное возбуждение. Далее образцы фиксировались при помощи клея ультрафиолетового отверждения на подложке оксида кремния с предварительно напылённым электродом, и толщина уменьшалась до 200 мкм. Для уменьшения толщины

использовалась механическая шлифовка с размером абразива до 1 мкм и на финальном этапе проводилась механохимическая полировка коллоидным раствором диоксида кремния.

Для создания монодоменного состояния в образцах использовалась следующая последовательность действий: (1) нагрев в течение 15 минут до 200 °С, (2) приложение постоянного электрического поля напряженностью 200 В/мм в течение 15 минут, (3) охлаждение в постоянном поле напряженностью 200 В/мм до комнатной температуры в течение 15 минут, (4) уменьшение поля до нуля в течение 5 мин. Контроль полученного доменного состояния образцов производился при помощи оптической микроскопии в режиме светлого поля со скрещенными поляризаторами.

2.1.2 Создание регулярной доменной структуры облучением электронным пучком

Подготовка образцов к облучению электронным пучком представляла собой нанесение на полярные поверхности пластин электрода и слоя фоторезиста, позволяющего создать зарядовый зонд из локализованных электронов. На (001) поверхность методом магнетронного распыления наносился электрод из Cu или ITO толщиной 100 нм, который заземлялся во время облучения. Облучаемая поверхность очищалась от органических загрязнений. Нанесение фоторезиста производилось в чистой комнате. Слой фоторезиста AZ nLOF 2020 (Microchemicals, Германия) толщиной 2,5 мкм наносился центрифугированием и прогревался при 40 °С. Образцы закреплялись на проводящей заземлённой подложке с помощью клея ультрафиолетового отверждения.

Облучение сфокусированным электронным пучком (Рисунок 1а) проводилось в рабочей станции Auriga CrossBeam (Carl Zeiss, Германия) с автоэмиссионным катодом Шоттки. Управление параметрами облучения и положением пучка на поверхности осуществлялось при помощи системы электронно-лучевой литографии Elphy Multibeam (Raith, Германия). Для задания траектории перемещения пучка и времени экспонирования (дозы заряда) применялось программное обеспечение Raith NanoSuite. Использовались следующие параметры облучения: ускоряющее напряжение – 12 кВ, ток пучка – 1,46 нА, доза облучения – 1100 пКл. Структуры представляли собой периодические полосы (Рисунок 1б), ориентированные вдоль [010] оси. Площадь всей структуры составила $0,4 \times 0,5 \text{ мм}^2$, а ширина отдельной полосы - около 1 мкм.

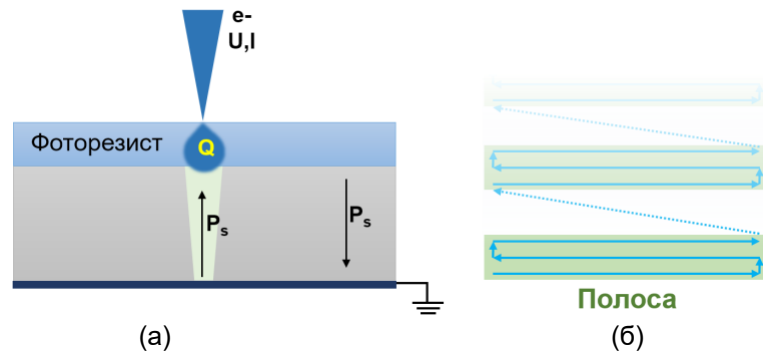


Рисунок 1. Схема процесса создания регулярной полосовой доменной структуры электронным пучком в PMN-PT.

Статическая доменная структура после химического удаления слоя фоторезиста визуализировалась на поверхности и в объеме с помощью микроскопии генерации второй гармоники (МГВГ) по типу Черенкова [33] (Рисунок 2), реализованной на основе рабочей станции NTEGRA Spectra (NT-MDT, Россия).

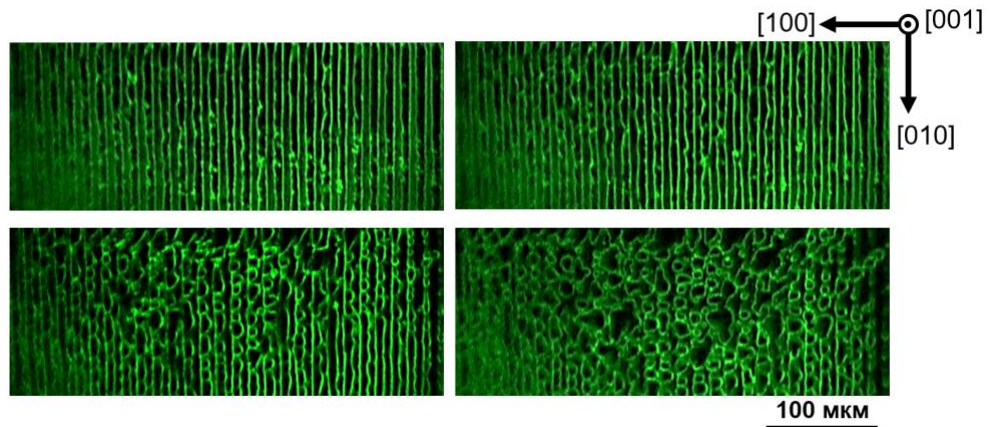


Рисунок 2. Изображения МГВГ полосовых доменов с периодом 14,5 мкм, созданных облучением электронным пучком, на глубине, мкм: (а) 10, (б) 50, (в) 100, (г) 190.

Визуализация доменной структуры с помощью МГВГ позволила определить, что полосовые домены существуют только в приповерхностном слое толщиной не более пяти периодов создаваемой структуры (Рисунок 2а-б). На бóльшей глубине в объеме кристалла создаваемое при сканировании пучком электрическое поле пространственно однородно, что приводит к формированию нерегулярной доменной структуры (Рисунок 2в-г).

2.1.3 Создание регулярной доменной структуры переключением поляризации с помощью гребневых твердотельных электродов

Регулярная доменная структура была также создана переключением с помощью системы твердотельных электродов. Методом магнетронного напыления на (001) полярную поверхность монокристаллических образцов PMN-0,38PT через маску, созданную фотолитографией, наносился электрод гребневой формы с периодом 25,3 мкм из пленки

ITO толщиной около 100 нм. На противоположную полярную поверхность образцов наносился сплошной электрод.

С целью устранения сегнетоэластических доменов, образовавшихся в процессе нанесения системы электродов, производилась дополнительная поляризация образца в постоянном поле. Для этого поверхность образца с гребневым электродом покрывалась водным раствором LiCl, что позволило приложить однородное электрическое поле ко всей поверхности образца (Рисунок 3а). Прикладывался трапецеидальный импульс электрического поля (Рисунок 3б) со следующими параметрами: амплитуда – 150 В/мм, длительность – 20 мин, время нарастания – 1 мин, время спада – 10 мин.

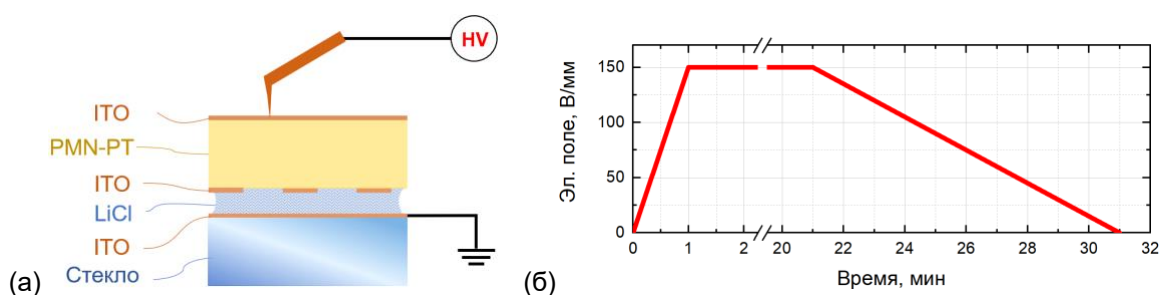


Рисунок 3. (а) Схема проведения дополнительной поляризации образца, (б) электрический импульс.

Для формирования 180-градусной доменной структуры заданной конфигурации использовался оригинальный способ формирования доменной структуры со 180-градусными стенками в монокристаллической пластине многоосного нелинейно-оптического сегнетоэлектрика. Использованное техническое решение представлено в качестве заявки на получение патента. Данная технология критически важна для решения поставленной задачи, поскольку позволяет значительно снизить вероятность образования сегнетоэластических доменов и разрушение образца.

При переключении поляризации производился *in situ* контроль эволюции доменной структуры с помощью оптической визуализации доменов с использованием оптического поляризационного микроскопа LMA10 (Carl Zeiss, Германия) и камеры Mini UX100 (Photron, США). Генерация импульсов электрического поля осуществлялась с помощью многофункциональной платы NI-6251 (National Instruments, США) и высоковольтного усилителя TREK 677B (Trek, США). Переключение поляризации производилось трапецеидальными импульсами электрического поля: амплитуда – до 600 В/мм, длительность – до 10 с, длительности фронта и спада – 20 с.

Визуализация доменной структуры в объеме с помощью МГВГ позволила выявить наличие регулярной доменной структуры лишь вблизи поверхности (Рисунок 4а), а на глубине около 40 мкм наблюдается нерегулярная доменная структура, что обусловлено

пространственной однородностью поля в объёме образца (Рисунок 4б, в). Аналогичный эффект наблюдался и при облучении электронным пучком, смотри п.1.3.

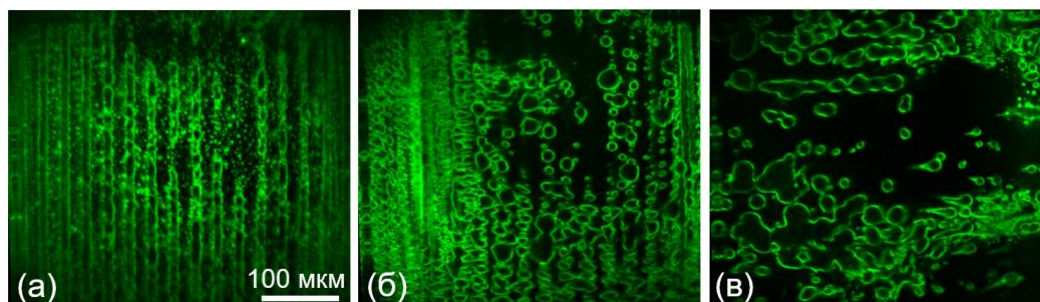


Рисунок 4. (а) Схема образца при переключении поляризации с твердотельными электродами. (б) Изображения МГВГ массива полосовых доменов с периодом 25 мкм на глубине, мкм: (б) 10, (в) 40, (г) 100.

Результаты работы по п. 2.1 данного Отчёта соответствуют требованиям п. 4.1.8 Приложения 9 к Соглашению 13.2251.21.0101: Прототипы преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой должны быть изготовлены с использованием методик создания регулярной доменной структуры с периодом менее 50 мкм, разработанных на втором этапе проекта.

Для проведения исследований по данному пункту выполненных работ использовалось следующее оборудование Уральского ЦКП «Современные нанотехнологии» УрФУ:

- Система контроля качества фотолитографии на базе Olympus BX51,
- Установка для нанесения и термической обработки фоторезиста Sawatec SM180-HP250HDMS,
- Установка совмещения фотошаблона и пластины SUSS MJB4,
- Установка для очистки пластин, проявки и удаления резиста OPTIwet ST30, Россия
- Установка реактивно-ионного травления Plasmalab 80 plus RIE,
- Вакуумная установка для электронно-лучевого испарения и магнетронного напыления Auto 500 Edwards,
- Высоковольтный усилитель TREK 20/20,
- Плата сбора данных NI USB-6251,
- Оптический микроскоп CarlZeiss LMA10 с системой скоростной видеосъёмки,
- Оптический микроскоп Olympus BX61,
- Сканирующий зондовый микроскоп Asylum Research MFP-3D,
- Конфокальный микроскоп комбинационного рассеяния света WiTecAlpha 300 AR,
- Сканирующая зондовая нанолaborатория NTEGRASpectra,
- Станок для прецизионной шлифовки и полировки PM5.

2.2 Тестирование прототипов преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой

Тестирование эффективности генерации второй гармоники в кристаллах PMN-PT с регулярной доменной структурой (РДС) осуществлялось с использованием однопроходной схемы без резонатора (Рисунок 5). В качестве источника накачки использовался фемтосекундный лазер TETA-10 (ООО "Авеста-проект", Троицк) с длиной волны 1030 нм, длительностью импульсов 250 фс и частотой следования 100 кГц. Для управления поляризацией излучения накачки использовался оптический ротатор 6AFR-1030С (ООО "Авеста-проект", Троицк). Излучение накачки фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 200 мм в кристалл PMN-PT с РДС, расположенный на 2-х координатном моторизованном оптическом столике 2TS86-SM-XZ (ООО "Авеста-проект", Троицк). После прохождения кристалла излучение волны накачки и волны второй гармоники коллимировалось линзой с фокусным расстоянием 75 мм. Сигнал накачки отделялся от сигнала второй гармоники с помощью оптического фильтра из цветного оптического стекла СЗС-21. Интенсивность сигнала второй гармоники измерялась с помощью измерителя мощности лазерного излучения Vega (Ophir, Израиль) с измерительной головкой PD330R-3W (Ophir, Израиль) на основе кремниевого фотодиода.

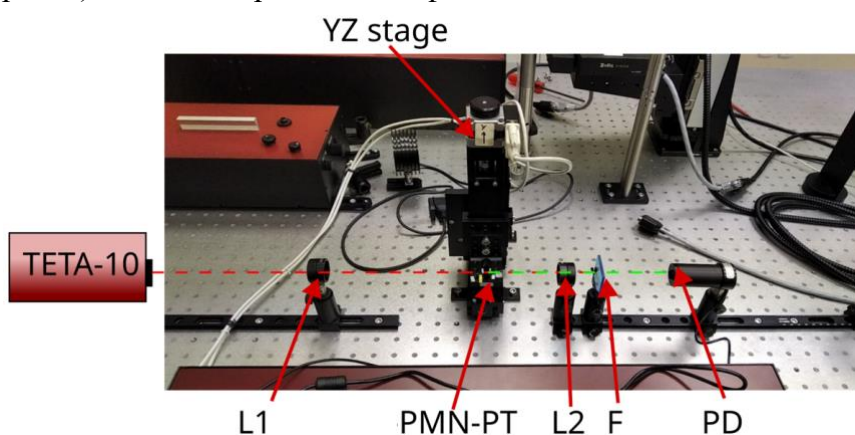


Рисунок 5. Схема экспериментальной установки для измерения эффективности ГВГ на кристалле PMN-PT с РДС. Фемтосекундный лазер накачки *TETA-10*, *L1* – линза с $f=200$ мм, *PMN-PT* – образец с РДС, *L2* – линза с $f=75$ мм, *F* – фильтр ИК излучения, *PD* – кремниевый фотодиод, *XY-stage* – моторизованная подвижка.

Средняя мощность лазера накачки составляла 500 мВт. Измеряемое фоновое излучение не превышало 200 нВт. Полученные интенсивности сигналов второй гармоники с учетом фонового излучения приведены в Таблице 2.

Таблица 2. Полученные величины сигнала второй гармоники для различных порядков синхронизма и типов преобразования, мкВт

Тип преобразования	$m=4$	$m=5$
<i>ee-e</i>	–	0.65
<i>oo-e</i>	15	10

Для импульсной накачки ожидаемая интенсивность сигнала второй гармоники определяется выражением [34]:

$$P_{2\omega} = \frac{16 \pi^2 d_{eff}^2 P_{\omega}^2 l_t t_{rep} L}{n_{\omega} n_{2\omega} c \varepsilon_0 \lambda_1^3 \tau b} \quad (1)$$

где d_{eff} – эффективный нелинейно-оптический коэффициент, P_{ω} – интенсивность сигнала накачки, l_t – длина расстройки, t_{rep} – частота следования импульсов, n_{ω} и $n_{2\omega}$ – показатели преломления материала на основной и второй гармонике соответственно, c – скорость света, ε_0 – диэлектрическая постоянная вакуума, λ_1 – длина волны накачки, τ – длительность импульса, L – длина участка с РДС, b – конфокальный параметр пучка накачки.

Эффективный нелинейно-оптический коэффициент определяется выражением [35]:

$$d_{eff} = \frac{2d_{ij}}{\pi m} \sin(\pi m D) \quad (2)$$

где d_{ij} – соответствующий преобразованию коэффициент нелинейно-оптического тензора $\chi^{(2)}$ (d_{31} для $oo-e$ и d_{33} для $ee-e$), D – коэффициент заполнения РДС.

Из полученных результатов (Таблица 2) и формул (1) и (2) видно, что различие интенсивностей сигналов второй гармоники для $oo-e$ преобразования соответствует квадрату отношения порядков синхронизма для этих структур. Большая эффективность $oo-e$ преобразования по сравнению с $ee-e$ преобразованием объясняется тем, что в данных материалах коэффициент d_{31} является наибольшим в тензоре $\chi^{(2)}$ [36].

Максимальная полученная приведенная эффективность преобразования в образце PMN-PT с РДС (для $oo-e$ преобразования 4-го порядка) составила $6 \cdot 10^{-2} \%$ /(Вт·см).

Результаты работы по п. 2.2 данного Отчёта соответствуют требованиям п. 4.1.9 Приложения 9 к Соглашению 13.2251.21.0101: Прототипы преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой с периодом менее 50 мкм должны быть протестированы с использованием методик контроля эффективности регулярной доменной структуры, разработанных на втором этапе проекта, на лазерном стенде ультракоротких импульсов на базе фемтосекундного лазера ТЕТА-10.

Для проведения исследований по данному пункту выполненных работ использовалось следующее оборудование Уральского ЦКП «Современные нанотехнологии» УрФУ:

- Лазерный стенд ультракоротких импульсов на базе фемтосекундного лазера ТЕТА-10, Россия.

2.3 Изготовление прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой

Китайскими партнёрами была предложена [37] конфигурация каскадного оптического дефлектора для отклонения лазерного луча, представляющего собой активную оптическую фазированную решётку (ОФР) [38], которая может быть реализована в сегнетоэлектрических кристаллах методами доменной инженерии. Схема предложенной ОФР представлена на рисунке 6.

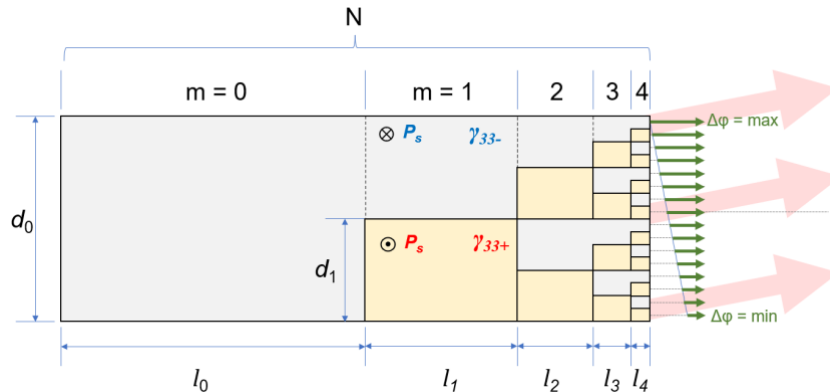


Рисунок 6. Схема каскадного оптического дефлектора из пяти последовательных ступеней. Серые и бежевые участки представляют собой домены с противоположным направлением спонтанной поляризации. Длина зелёных стрелок пропорциональна локальной разности фаз, возникающей при прохождении света через данный оптический канал при приложении поля.

Длина и ширина доменов для каждой последующей ступени должны уменьшаться в два раза. Количество ступеней определяет величину максимального отклонения при заданном напряжении. Предложенная схема позволяет с помощью одного блока управлять всеми оптическими каналами, независимо от их количества.

Рабочей характеристикой электрооптического эффекта является наведенное электрическим полем E двулучепреломление $\Delta n(E)$ [39]:

$$\Delta n(E) = \frac{n^3 \cdot \langle r \rangle \cdot E}{2}, \quad (???)$$

где n – показатель преломления, $\langle r \rangle$ – эффективный электрооптический коэффициент.

Наведенное изменение показателя преломления может быть использовано для изменения направления луча в пространстве, то есть для создания оптических дефлекторов. Угол отклонения луча определяется соотношением

$$\theta_s(E) = \frac{\lambda \cdot \Delta\phi(E)}{2\pi d}, \quad (???)$$

где λ – длина волны, d – ширина отдельного канала ОФР, а $\Delta\phi(E)$ – разность фаз между соседними каналами.

При приложении электрического поля E разность фаз $\Delta\varphi$ изменяется по закону:

$$\Delta\varphi(E) = \frac{2\pi l \cdot \Delta n(E)}{\lambda}, \quad (???)$$

где l – эффективная длина отдельного канала.

Таким образом, распределением излучения в дальнем поле (направлением луча) можно управлять с помощью электрического напряжения. Следует отметить, что такая конфигурация ОФР может быть интегрирована в один волновод, что приведет к значительному снижению фазовых ошибок во всей структуре. Учитывая высокое значение ЭО коэффициента PMN-PT $\langle r \rangle = 41$ пм/В [40, 41], было предложено изготовить прототипы каскадных оптических дефлекторов на основе данного материала, а также для сравнения изготовить аналогичные структуры в наиболее часто используемом нелинейно-оптическом сегнетоэлектрике конгруэнтном ниобате лития (CLN).

2.3.1 Создание прототипов каскадных оптических дефлекторов на основе PMN-PT

Для изготовления прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT использовались монокристаллические образцы PMN-0,38PT толщиной 0,8 и 0,5 мм, находящиеся в тетрагональной фазе при комнатной температуре и вырезанные перпендикулярно [001] кристаллографической оси. Подробности механической подготовки образцов приведены в п. 2.1.1 данного отчёта.

Параметры системы каскадных электродов были рассчитаны, исходя из размеров образцов (Рисунок 7). Через маску методом магнетронного напыления на (001) полярную поверхность образцов наносилась тонкая пленка оксида индия-олова (ITO) с поверхностным сопротивлением 200 Ом·см, а на противоположную поверхность – сплошной ITO электрод.

Сравнительно большой размер элементов электрода последней ступени каскада (ширина от 80 до 125 мкм) был обусловлен слиянием доменов при переключении поляризации в конфигурации с электродами меньших размеров, что можно отнести к проблеме неоднородности состава использованных кристаллов PMN-PT.

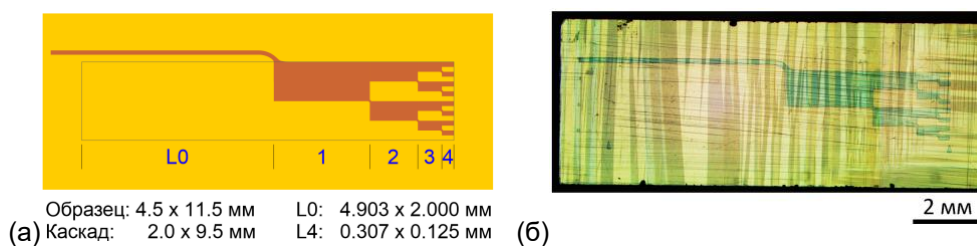


Рисунок 7. (а) Схема каскадного электрода и (б) оптическое изображение образца PMN-PT с напыленной системой каскадных электродов.

Для формирования 180-градусной доменной структуры с заданной каскадной конфигурацией использовалась фиксация полярных поверхностей образцов в соответствии со «Способом формирования доменной структуры со 180-градусными стенками в монокристаллической пластине многоосного нелинейно-оптического сегнетоэлектрика».

Для переключения поляризации использовались трапецеидальные импульсы электрического поля с амплитудой до 600 В/мм, длительностью до 10 с, длительностью фронта и спада 20 с. Переключение поляризации производилось при температуре 80°C. Нагрев образцов осуществлялся с помощью термоячейки THMS600 (Linkam Scientific Instruments, Великобритания). Параметры процесса переключения указаны в п. 2.1.3 данного отчёта.

В результате переключения поляризации описанным выше методом были получены прототипы оптических дефлекторов на основе PMN-PT с каскадной доменной структурой, визуализированной оптической микроскопией (Рисунок 8а, б) и в объеме методом МГВГ (Рисунок 8в, г).

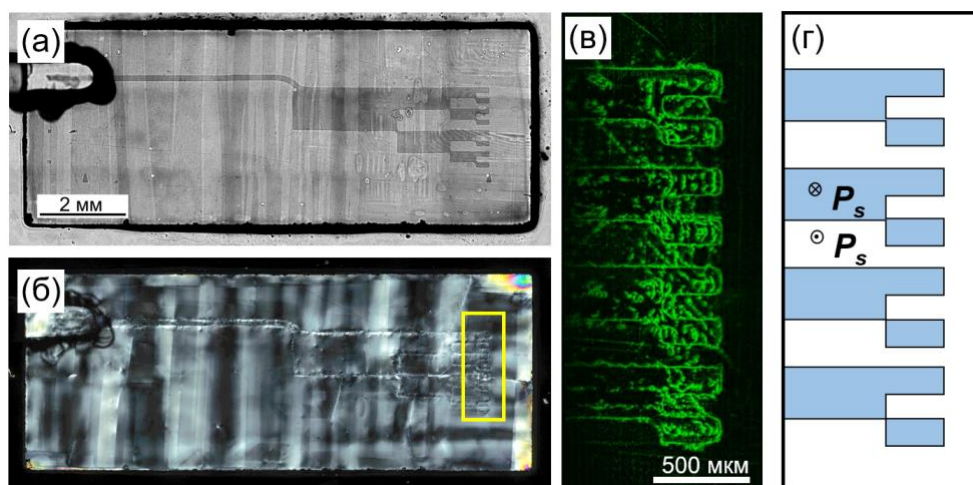


Рисунок 8. Оптические изображения образца (а) в отражённом свете до переключения и (б) в проходящем свете при скрещенных поляризаторах после переключения. (в) МГВГ изображение и (г) соответствующая схема участка каскадной доменной структуры, выделенного на (б).

2.3.2 Создание прототипов каскадных оптических дефлекторов на основе CLN

Для сравнения параметров каскадных оптических дефлекторов с предложенной геометрией доменной структуры были созданы каскадные оптические дефлекторы на основе CLN. Использовались пластины CLN производства Jiangxi Unicrystal Technology Co. Ltd., Китай, вырезанные перпендикулярно X, Y и Z кристаллографическим осям (основная поверхность – Z), толщиной 500 мкм.

Следует отметить, что методика создания каскадной доменной структуры в одноосном сегнетоэлектрике CLN существенно проще, чем в многоосном сегнетоэлектрике

PMN-PT. Так, в CLN: (1) отсутствует возможность образования сегнетоэластических доменов; (2) имеется возможность создания доменов с линейными размерами порядка единиц микрометров с использованием твердотельных и жидких электродов; (3) анизотропия роста доменов обеспечивает малые отклонения доменных границ от выбранного кристаллографического направления [42].

Учитывая вышеперечисленные особенности, для создания в пластинах CLN набора каскадных доменных структур были рассчитаны параметры светлопольных масок, которые были использованы для нанесения фоторезиста на Z-полярную поверхность монодоменных образцов CLN методом фотолитографии (Рисунок 9а, б). Для электрического контакта через окна в фоторезисте при переключении поляризации использовался водный раствор LiCl. Образец закреплялся к чашке Петри с отверстием для доступа к участку образца с нанесённым фоторезистом (Рисунок 9е).

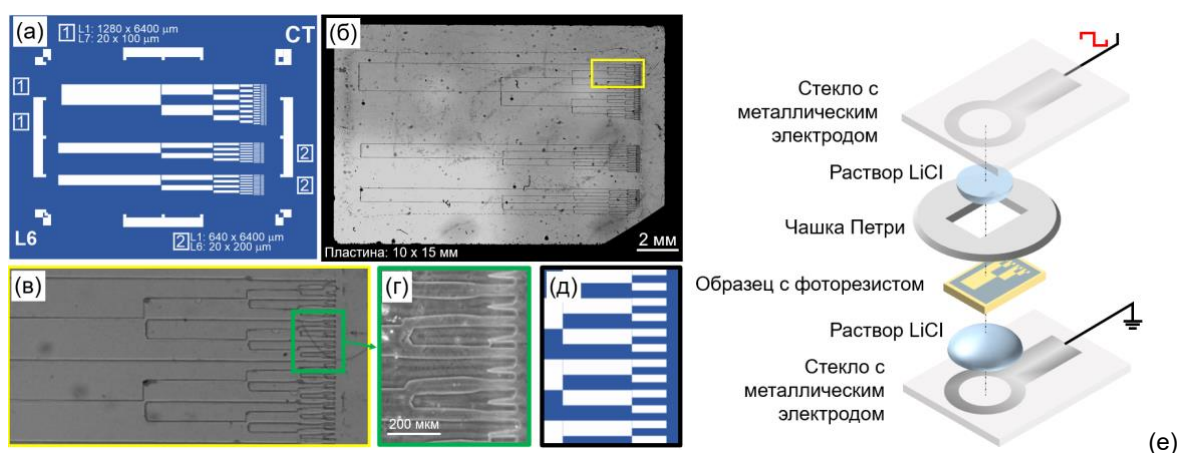


Рисунок 9. (а) Схема маски для фотолитографии и (б-г) оптические изображения полученной каскадной доменной структуры. (д) Участок маски, соответствующий изображению (г). (е) Схема компоновки экспериментальной ячейки для переключения поляризации в образцах CLN.

Для переключения поляризации использовались импульсы электрического поля специальной формы амплитудой 21,4 кВ/мм (Рисунок 10). В результате переключения поляризации, были получены прототипы оптических дефлекторов на основе CLN с каскадной доменной структурой, визуализированной с помощью оптической микроскопии (Рисунок 9б-г).

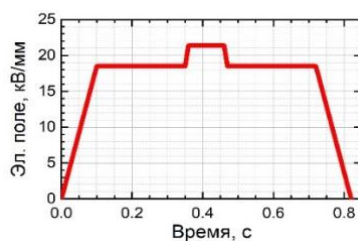


Рисунок 10. Импульс электрического поля, применяемый при переключении образцов на основе CLN.

Результаты работы по п. 2.3 данного Отчёта соответствуют требованиям п. 4.1.10 Приложения 9 к Соглашению 13.2251.21.0101. Прототипы каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристалла семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой должны быть изготовлены с использованием методик создания каскадной доменной структуры с переменным периодом, разработанных на втором этапе проекта.

Для проведения исследований по данному пункту выполненных работ использовалось следующее оборудование Уральского ЦКП «Современные нанотехнологии» УрФУ:

- Система контроля качества фотолитографии на базе Olympus BX51,
- Установка для нанесения и термической обработки фоторезиста Sawatec SM180-HP250HDMS,
- Установка совмещения фотошаблона и пластины SUSS MJB4,
- Установка для очистки пластин, проявки и удаления резиста OPTIwet ST30, Россия
- Установка реактивно-ионного травления Plasmalab 80 plus RIE,
- Вакуумная установка для электронно-лучевого испарения и магнетронного напыления Auto 500 Edwards, Россия
- Высоковольтный усилитель TREK 20/20,
- Плата сбора данных NI USB-6251,
- Оптический микроскоп CarlZeiss LMA10 с системой скоростной видеосъёмки,
- Оптический микроскоп Olympus BX61,
- Сканирующий зондовый микроскоп Asylum Research MFP-3D,
- Конфокальный микроскоп комбинационного рассеяния света WiTecAlpha 300 AR,
- Сканирующая зондовая нанолaborатория NTEGRASpectra,
- Станок для прецизионной шлифовки и полировки PM5.

2.4 Тестирование прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой

Для тестирования прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения использовались компоненты стенда ультракоротких импульсов на базе фемтосекундного лазера TETA-10. Была собрана схема тестирования (Рисунок 11а) с использованием полупроводникового лазерного излучателя ИП-38-3,5 (АО «Плазма», Россия) с длиной волны 633 нм, генератора электрических сигналов AFG1062 (Tektronix Inc., США) и высоковольтного усилителя 677В (Trek Inc., США). Прототип дефлектора размещался на расстоянии 830 мм от экрана (Рисунок 11б). К прототипу дефлектора прикладывалось синусоидальное напряжение с частотой 1 Гц, создававшее электрическое поле амплитудой от -100 до 500 В/мм (для прототипов на основе PMN-PT) и от -2 до 2 кВ/мм (для прототипов на основе CLN).

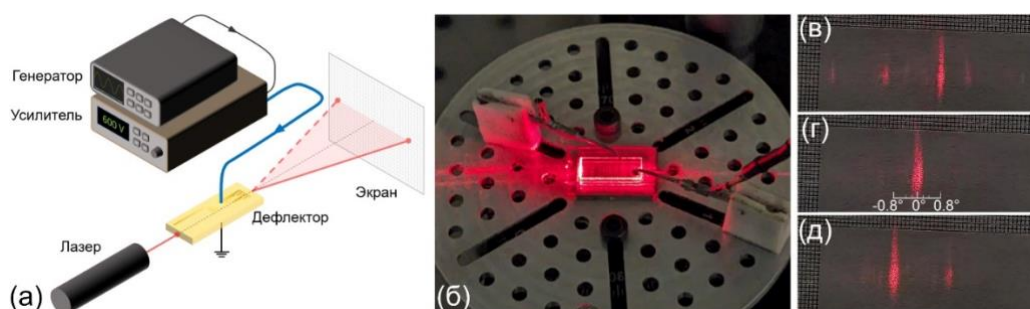


Рисунок 11. (а) Схема стенда тестирования прототипов каскадных оптических дефлекторов. Фотографии (б) прототипа дефлектора на основе PMN-PT в процессе тестирования и (в-д) распределения интенсивности излучения, полученного при прохождении через каскадную доменную структуру прототипа дефлектора на основе CLN при приложении электрического поля (в) 2, (г) 0, (д) -2 кВ/мм.

Характеристики изготовленных прототипов оптических дефлекторов приведены в Таблице 3. Зависимости от времени интенсивности лазерного излучения и приложенного электрического поля, полевые зависимости угла отклонения прототипов на основе PMN-PT и CLN приведены на рисунках 12 и 13, соответственно.

Таблица 3. Характеристики прототипов дефлекторов на основе PMN-PT и CLN.

Номер п/п	Материал прототипа	Количество ступеней каскадной структуры	Размер последнего элемента каскада, $D \times Ш$, $\mu\text{м}^2$	Отклоняющая способность γ , $^\circ/\text{В}/\text{мм}$	Максимальный угловой диапазон $\Delta\theta$, $^\circ$
1	PMN-0,38PT	4	307×80	$2,5 \cdot 10^{-4}$	0,130
2	PMN-0,38PT	4	307×125	$2,4 \cdot 10^{-4}$	0,115
3	CLN	7	100×20	$3,9 \cdot 10^{-4}$	1,60
4	CLN	6	200×40	$3,1 \cdot 10^{-4}$	1,21
5	CLN	6	200×40	$3,1 \cdot 10^{-4}$	1,15

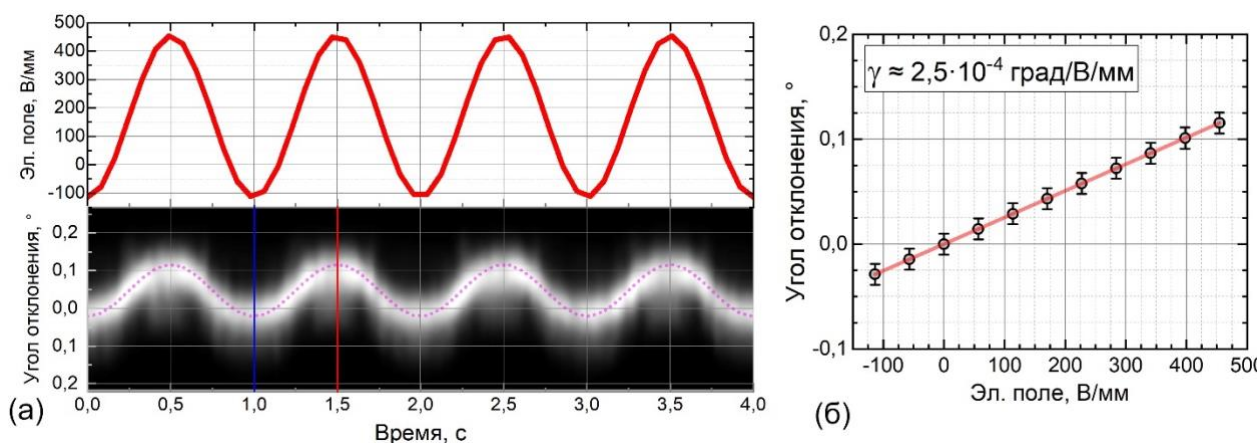


Рисунок 12. (а) Зависимость от времени интенсивности лазерного излучения и приложенного электрического поля, (б) полевая зависимость угла отклонения прототипа №1 на основе PMN-РТ.

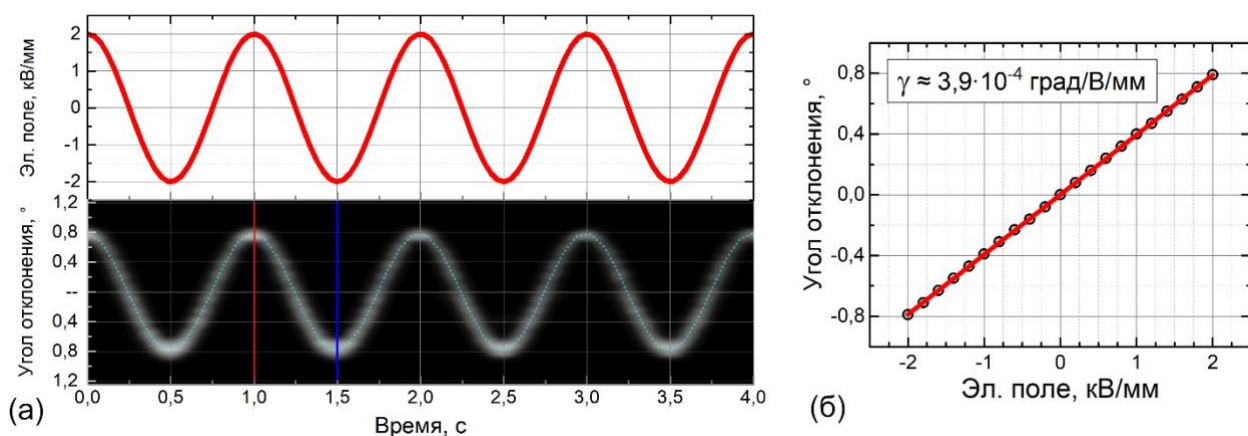


Рисунок 13. (а) Зависимость от времени интенсивности лазерного излучения и приложенного электрического поля, (б) полевая зависимость угла отклонения прототипа №3 на основе CLN.

Результаты работы по п. 2.4 данного Отчёта соответствуют требованиям п. 4.1.11 Приложения 9 к Соглашению 13.2251.21.0101. Прототипы каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристалла семейства PMN-РТ с заданной стабильной доменной структурой должны быть протестированы с использованием методик контроля эффективности каскадной доменной структуры с переменным периодом, разработанных на втором этапе проекта.

Для проведения исследований по данному пункту выполненных работ использовалось следующее оборудование Уральского ЦКП «Современные нанотехнологии» УрФУ:

- Лазерный стенд ультракоротких импульсов на базе фемтосекундного лазера ТЕТА-10.

3 Работы, выполненные на третьем этапе НИР иностранным партнером.

3.1 Изготовление прототипов преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой

Данная работа была выполнена Иностранным партнером за счёт средств внебюджетного финансирования.

В Сианьском транспортном университете были успешно изготовлены прототипы преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой. Были получены доменные структуры с периодом 24 микрометра в кристаллах PMN-PT (Рисунок 14), вырезанных перпендикулярно $[110]$ и находящихся в ромбоэдрической фазе (см. п. 1 Аннотационного отчета Иностранного партнера).

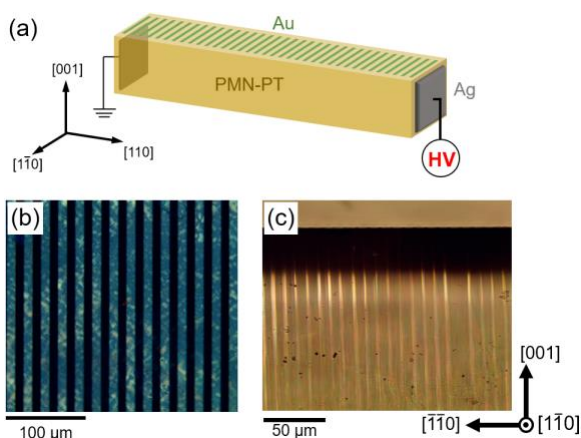


Рисунок 14. (а) Схема эксперимента по созданию регулярной доменной структуры в PMN-PT ромбоэдрической фазы. Оптические изображения (b) золотых полосовых электродов на (001) поверхности и (c) регулярной доменной структуры в монокристаллах PMN-PT с периодом 24 мкм.

Результаты работы по п. 3.1 данного Отчёта соответствуют требованиям п. 4.2.9 Приложения 9 к Соглашению 13.2251.21.0101: Прототипы преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой должны быть изготовлены с использованием методик создания регулярной доменной структуры с периодом менее 50 мкм, разработанных на втором этапе проекта.

Для проведения исследований по данному пункту выполненных работ использовалось следующее оборудование Сианьского транспортного университета, Китай:

- Высоковольтный усилитель Trek609C-6,
- Оптический микроскоп Olympus BX51,
- Нагревательный столик Linkam THMSE 600.

3.2 Изготовление прототипов каскадных оптических deflectоров с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой

Данная работа была выполнена Иностранным партнером за счёт средств внебюджетного софинансирования.

В Сианьском транспортном университете для изготовления прототипов оптических deflectоров на основе PMN-PT использовалась методика, ранее успешно реализованная ими для создания оптических deflectоров с каскадной доменной структурой на основе кристаллов конгруэнтного ниобата лития [37] (Рисунок 15). Было показано, что особенности кристаллов PMN-PT не позволяют создать этим методом необходимой доменной структуры. (см. п. 2 Аннотационного отчета Иностранного партнера).

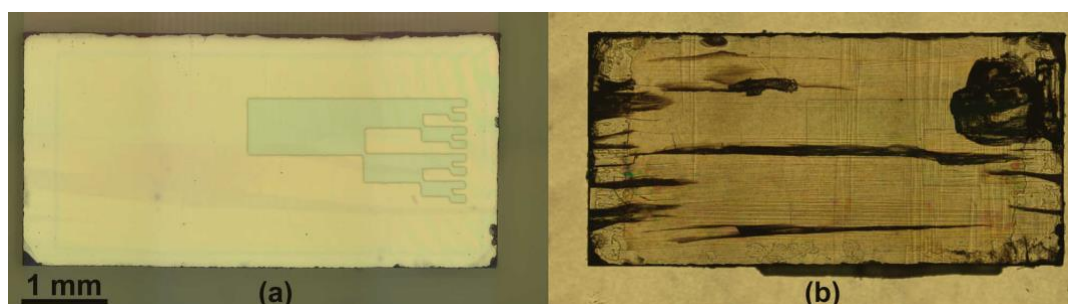


Рисунок 15. Оптические изображения: (a) образца с системой каскадных электродов, (b) образца после переключения.

Результаты работы по п. 3.2 данного Отчёта соответствуют требованиям п. 4.2.10 Приложения 9 к Соглашению 13.2251.21.0101: Прототипы каскадных оптических deflectоров с электронным управлением углом отклонения на основе кристалла семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой должны быть изготовлены с использованием методик создания каскадной доменной структуры с переменным периодом, разработанных на втором этапе проекта.

Для проведения исследований по данному пункту выполненных работ использовалось следующее оборудование Сианьского транспортного университета, Китай:

- Высоковольтный усилитель Trek609C-6,
- Оптический микроскоп Olympus BX51,
- Нагревательный столик Linkam THMSE 600.

3.3 Тестирование прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой

Данная работа была выполнена Иностранным партнером за счёт средств внебюджетного софинансирования.

Для тестирования прототипов каскадных оптических дефлекторов использовался лазерный стенд на основе Nd:YAG лазера с длиной волны 1064 нм (Рисунок 16).

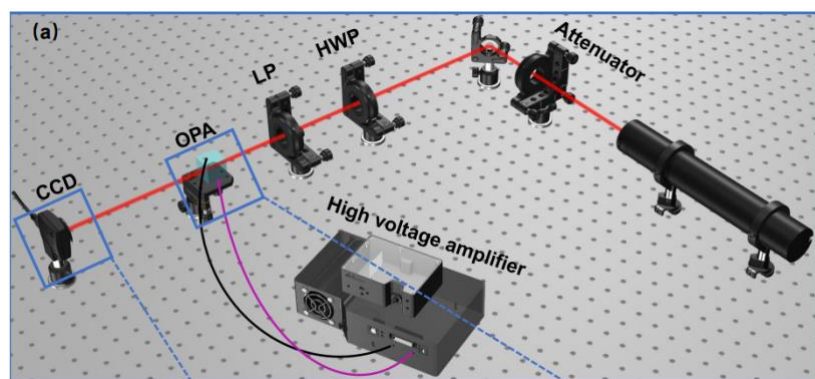


Рисунок 16. Принципиальная схема экспериментальной установки для тестирования оптических дефлекторов с каскадной доменной структурой.

Для тестирования оптического дефлектора на основе PMN-PT иностранному партнёру был передан образец №1 (см. Таблицу 3, п. 2.4). Измеренные зависимости углов отклонения луча от приложенного поля прототипа на основе PMN-PT приведены на рисунке 17. Отклоняющая способность прототипа дефлектора на основе PMN-PT составила 0,25 град/В/мкм (см. п. 3 Аннотационного отчета Иностранного партнера).

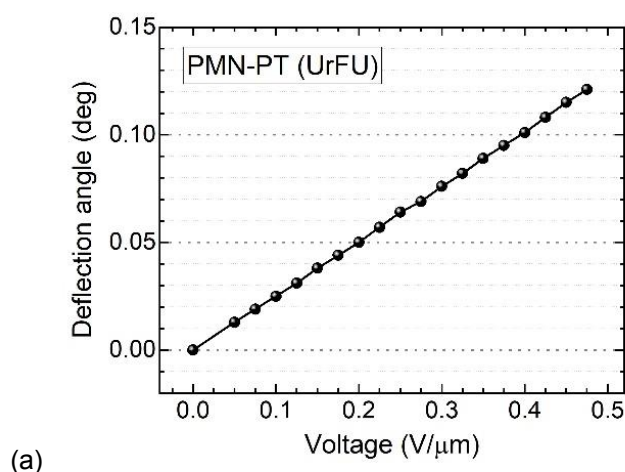


Рисунок 17. Угол отклонения луча в зависимости от приложенного поля для прототипов на основе PMN-PT.

Результаты работы по п. 3.3 данного Отчёта соответствуют требованиям п. 4.2.11 Приложения 9 к Соглашению 13.2251.21.0101: Прототипы каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристалла семейства

PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой должны быть протестированы с использованием методик контроля эффективности каскадной доменной структуры с переменным периодом, разработанных на втором этапе проекта, с помощью лазерного стенда на основе Nd:YAG лазера с модуляцией добротности.

Для проведения исследований по данному пункту выполненных работ использовалось следующее оборудование Сианьского транспортного университета, Китай:

- Лазерный стенд на основе Nd:YAG лазера с модуляцией добротности.

4 Обобщение результатов

Российской стороной на третьем этапе выполнения проекта получены следующие основные результаты:

1. Изготовлены прототипы преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой методом облучения электронным пучком и приложением поля с помощью гребневых электродов.

2. Измерены параметры прототипов преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой. Максимальная полученная приведенная эффективность преобразования в образце с периодом 14,5 мкм для *oo-e* преобразования 4-го порядка составила $6 \cdot 10^{-2} \%$ /(Вт·см).

3. Изготовлены прототипы каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения с заданной стабильной доменной структурой на основе кристаллов PMN-PT и ниобата лития.

4. При изготовлении прототипов преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники и каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов PMN-PT использовалась фиксация полярных поверхностей образцов с целью снижения вероятности образования сегнетоэластических доменов и разрушения образца. Данное техническое решение было представлено в качестве заявки на получение патента.

5. Измерены параметры прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения с заданной стабильной доменной структурой на основе кристаллов семейства PMN-PT и ниобата лития. Показано, что отклоняющая способность для прототипов на основе PMN-PT составила $2,5 \cdot 10^{-4}$ град/В/мм, а для ниобата лития $3,9 \cdot 10^{-4}$ град/В/мм.

Иностраннным партнером на третьем этапе получены следующие основные результаты:

1. На основе кристаллов PMN-PT, вырезанных перпендикулярно [110] и находящихся в ромбоэдрической фазе, с регулярной доменной структурой с периодом 24 мкм изготовлены прототипы преобразователей частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники.

2. Показано, что особенности кристаллов PMN-PT не позволяют создать необходимую каскадную доменную структуру методом, разработанным для создания

оптических дефлекторов с каскадной доменной структурой на основе кристаллов конгруэнтного ниобата лития.

3. Измерены параметры прототипов каскадных оптических дефлекторов с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой. Отклоняющая способность прототипа на основе PMN-PT составила 0,25 град/В/мкм.

Также за отчётный период опубликованы две совместные статьи:

1. Ushakov, A. D. Triple and double hysteresis loops in relaxor ferroelectric PMN-0.28PT crystals / A. D. Ushakov, Q. Hu, X. Liu, Z. Xu, X. Wei, V. Ya. Shur// *Ferroelectrics* – 2023. – Vol. 604. – P. 90–96.

2. Pashnina, E. Domain patterning in nonpolar cut PMN–PT by focused ion beam / E. Pashnina, D. Chezganov., A. Slautina, A. Turygin, A. Ushakov, Q. Hu, X. Liu, Z. Xu, X. Wei, V. Shur // *J. Adv. Dielectr.* – 2023. – Vol. 2350024. – P. 2350024-1 – 2350024-7.

Все задачи, поставленные на третий этап проекта, выполнены в полном объеме.

Выполнение задач третьего этапа проекта позволило впервые в значительной степени продвинуться на пути к практическому использованию кристаллов семейства PMN-PT в различных оптоэлектронных устройствах.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проект выполнялся совместно с иностранным партнером – группой Международного центра исследований диэлектриков Сианьского транспортного университета (Xi'an Jiaotong University), возглавляемой профессором Xiaoyong Wei. Научная группа имеет более чем двадцатилетний опыт исследований кристаллов релаксорных сегнетоэлектриков, в том числе, уникальный опыт выращивания высококачественных монокристаллов семейства PMN-PT и их механической обработки. Данной группой освоен и развит модифицированный метод Бриджмена для выращивания кристаллов бинарных и тройных систем.

Разработанные технологии выращивания высококачественных однородных кристаллов и изготовления монокристаллических пластин, а также разработка методов создания регулярной доменной структурой, открывают возможности для изготовления элементов для преобразования частоты лазерного излучения в широком спектральном диапазоне и электрооптических дефлекторов, изготовление и тестирование которых будет проведено при выполнении работ заключительного третьего этапа проекта. Полученные результаты представляют значительный интерес для компаний производителей волоконных и полупроводниковых лазеров. Преобразователи частоты лазерного излучения методом генерации второй гармоники на основе кристаллов семейства PMN-PT с регулярной доменной структурой представляют интерес для оптической коммуникации, оптической визуализации, оптической памяти и дистанционного зондирования. Каскадные оптические дефлекторы с электронным управлением углом отклонения на основе кристаллов семейства PMN-PT с заданной стабильной доменной структурой представляют значительный интерес для разработки телекоммуникационных устройств, оптических устройств обнаружения и определения дальности (лидаров), проекционного оборудования и медицинских тест-систем.

Отчет о выполнении второго этапа проекта размещен на официальном сайте Уральского федерального университета <https://urfu.ru/ru/science/nich/otchet-urfu/>

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Shur, V. Ya. Nano- and micro-domain engineering in normal and relaxor ferroelectrics / V. Y. Shur // Handbook of Advanced Dielectric, Piezoelectric and Ferroelectric Materials / ed. Z.-G. Ye. – Elsevier, 2008. – P. 622–669.
2. Fejer, M. M. Quasi-Phase-Matched Second Harmonic Generation: Tuning and Tolerances / M. M. Fejer et al. // IEEE Journal of Quantum Electronics 1992. – Vol. 28. – P. 2631–2654.
3. Miller, R. C. Optical Harmonic Generation in Single Crystal BaTiO₃ / R. C. Miller // Phys. Rev. – 1964. – Vol. 134. – P. A1313–A1319.
4. Chen, J.-Y. Efficient and highly tunable second-harmonic generation in Z-cut periodically poled lithium niobate nanowaveguides / J.-Y. Chen et al. // Opt. Lett. – 2020. – Vol. 45. – P. 3789.
5. Li, L. Tunable violet radiation in a quasi-phase-matched periodically poled stoichiometric lithium tantalate waveguide by direct femtosecond laser writing / L. Li et al. // Results Phys. – 2020. – Vol. 19. – P. 103373.
6. Eigner, C. Periodically poled ridge waveguides in KTP for second harmonic generation in the UV regime / C. Eigner et al. // Opt. Express – 2018. – Vol. 26. – P. 28827.
7. Umemura, N. Temperature-dependent quasi phase-matching properties of periodically poled LaBGeO₅ / N. Umemura et al. // Opt. Mater. Express – 2019. – Vol. 9. – P. 2159.
8. Tanzilli, S. PPLN waveguide for quantum communication / S. Tanzilli et al. // Eur. Phys. J. D – 2002. – Vol. 18. – P. 155–160.
9. Sasaki, Y. Terahertz-wave surface-emitted difference frequency generation in slant-stripe-type periodically poled LiNbO₃ crystal / Y. Sasaki et al. // Appl. Phys. Lett. – 2002. – Vol. 81. – P. 3323–3325.
10. Sun, E. Relaxor-based ferroelectric single crystals: Growth, domain engineering, characterization and applications / E. Sun, W. Cao // Prog. Mater. Sci. – 2014. – Vol. 65. – P. 124–210.
11. Bokov, A. A. Recent progress in relaxor ferroelectrics with perovskite structure / A. A. Bokov, Z.-G. Ye // J. Mater. Sci. – 2006. – Vol. 41. – P. 31–52.
12. Cowley, R. A. Relaxing with relaxors: A review of relaxor ferroelectrics / R. A. Cowley et al. // Adv. Phys. – 2011. – Vol. 60. – P. 229–327.
13. Tian, J. Improved stability for piezoelectric crystals grown in the lead indium niobate–lead magnesium niobate–lead titanate system / J. Tian et al. // Appl. Phys. Lett. – 2007. – Vol. 91. – P. 222903.
14. Jeong, D.-Y. Linear Electrooptic Properties of Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃–PbTiO₃ Single Crystals at Compositions Near the Morphotropic Phase Boundary / D.-Y. Jeong et al. // Jpn. J. Appl. Phys. – 2003. – Vol. 42. – P. 4387–4389.

15. Wan, X. Investigation on optical transmission spectra of $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ single crystals / X. Wan et al. // *Solid State Commun.* – 2004. – Vol. 129. – P. 401–405.
16. Zhao, Y. Linear optical properties and second-harmonic generation of $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ single crystals / Y. Zhao et al. // *Ferroelectrics* – 2019. – Vol. 542. – P. 112–119.
17. Qiu, C. Transparent ferroelectric crystals with ultrahigh piezoelectricity / C. Qiu et al. // *Nature* – 2020. – Vol. 577. – P. 350–354.
18. Lin, D. In-situ observation of domain wall motion in $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3-(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3$ crystals / D. Lin et al. // *J. Appl. Phys.* – 2014. – Vol. 116. – P. 034105.
19. Ye, Z. G. Morphotropic domain structures and phase transitions in relaxor-based piezo-/ferroelectric $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ single crystals / Z. G. Ye, M. Dong // *J. Appl. Phys.* – 2000. – Vol. 87. – P. 2312–2319.
20. Dietze, M. Single domain vs. polydomain [111] $0.72\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-0.28\text{PbTiO}_3$ single crystal. Polarization switching, dielectric and pyroelectric properties / M. Dietze et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2012. – Vol. 100. – P. 242905.
21. Li, X. Electric-field-induced phase transitions of $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ crystals studied by optical methods / X. Li et al. // *J. Phys. Condens. Matter* – 2009. – Vol. 21. – P. 335902.
22. Bokov, A. A. Domain structure in the monoclinic Pm phase of $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3$ single crystals / A. A. Bokov, Z.-G. Ye // *J. Appl. Phys.* – 2004. – Vol. 95. – P. 6347–6359.
23. Fang, F. Polarization rotation and multiphase coexistence for $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3$ single crystals at the morphotropic phase boundary under electric loading / F. Fang, X. Luo, W. Yang // *Phys. Rev. B* – 2009. – Vol. 79. – P. 174118.
24. Wang, R. Phase coexistence and domain configuration in $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-0.34\text{PbTiO}_3$ single crystal revealed by synchrotron-based X-ray diffractive three-dimensional reciprocal space mapping and piezoresponse force / R. Wang et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2016. – Vol. 108. – P. 152905.
25. Wang, D. Phase diagram and properties of $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3-(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3$ polycrystalline ceramics / D. Wang, M. Cao, S. Zhang // *J. Eur. Ceram. Soc.* – 2012. – Vol. 32. – P. 433–439.
26. Bednyakov, P. S. Formation of charged ferroelectric domain walls with controlled periodicity / P. S. Bednyakov et al. // *Sci. Rep.* – 2015. – Vol. 5. – P. 15819.
27. Ushakov, A. D. Direct observation of the domain kinetics during polarization reversal of tetragonal PMN-PT crystal / A. D. Ushakov et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2018. – Vol. 113. – P. 112902.
28. Ushakov, A. D. Direct observation of domain kinetics in rhombohedral PMN-28PT single

- crystals during polarization reversal / A. D. Ushakov et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2019. – Vol. 115. – P. 102903.
29. Ushakov, A. D. Dense ferroelectric-ferroelastic domain structures in rhombohedral PMN-28PT single crystals / A. D. Ushakov et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2020. – Vol. 116. – P. 182901.
 30. Luo, H. Growth and characterization of relaxor ferroelectric PMNT single crystals / H. Luo et al. // *Ferroelectrics* – 1999. – Vol. 231. – P. 97–102.
 31. Li, Z. High composition uniformity of 4" of PIN-PMN-PT single crystals grown by the modified Bridgman method / Z. Li et al. // *J. Cryst. Growth* – 2017. – Vol. 468. – P. 331–334.
 32. Davis, M. Phase transitions, anisotropy and domain engineering: the piezoelectric properties of relaxor-ferroelectric single crystals / M. Davis // Lausanne, EPFL – École Polytechnique Fédérale de Lausanne, 2006. – 360 p.
 33. Sheng, Y. Three-dimensional ferroelectric domain visualization by Čerenkov-type second harmonic generation / Y. Sheng et al. // *Opt. Express* – 2010. – Vol. 18. – P. 16539.
 34. Weiner, A. M. *Ultrafast Optics* / A. M. Weiner – Wiley, 2009. – 598 p.
 35. Arie, A. Periodic, quasi-periodic, and random quadratic nonlinear photonic crystals / A. Arie, N. Voloch // *Laser Photon. Rev.* – 2010. – Vol. 4. – P. 355–373.
 36. Chen, X. Quasi-phase matched second harmonic generation in a PMN-38PT crystal / X. Chen et al. // *Opt. Lett.* – 2022. – Vol. 47. – P. 2056.
 37. Li, J. Cascaded domain engineering optical phased array for beam steering / J. Li et al. // *Appl. Phys. Rev.* – 2023. – Vol. 10. – P. 031413.
 38. Thomas, J. A. Optimal cascade operation of optical phased-array beam deflectors / J. A. Thomas, Y. Fainman // *Appl. Opt.* – 1998. – Vol. 37. – P. 6196.
 39. Блистанов, А. А. Кристаллы квантовой и нелинейной оптики / А. А. Блистанов – Москва : МИСиС, 2007. – 431 p.
 40. Hu, Q. Achieve single domain state in (111)-oriented rhombohedral phase PMN-PT relaxor ferroelectric single crystals for electro-optical application / Q. Hu et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2019. – Vol. 115. – P. 222901.
 41. Wan, X. Refractive indices and linear electro-optic properties of $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ single crystals / X. Wan et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2004. – Vol. 85. – P. 5233–5235.
 42. Esin, A. A. Analogy between growth of crystals and ferroelectric domains. Application of Wulff construction / A. A. Esin, A. R. Akhmatkhanov, V. Y. Shur // *J. Cryst. Growth* – 2019. – Vol. 526. – P. 125236.