

---

*НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ*

---

## Нелинейная дифракция света на приповерхностных микродоменных структурах

А.В.Кондратов, М.В.Горкунов

---

*Теоретически рассмотрена нелинейная дифракция на периодических микродоменных структурах с различной ориентацией оси спонтанной поляризации относительно поверхности. Показана возможность достоверной неразрушающей диагностики периода, скважности и глубины доменных структур, а также формы доменных стенок под кристаллической поверхностью.*

*Ключевые слова:* нелинейная дифракция света, периодические микродоменные структуры, доменные стенки.

### 1. Введение

Исследования микроскопических доменных структур важны как для прояснения особенностей возникновения и стабилизации спонтанной поляризации в сегнетоэлектрических кристаллах, так и для понимания перспектив применения этих структур в фотонике и наноэлектронике. Исторически структуры с перемежающимся направлением полярной оси рассматривались, прежде всего, в качестве нелинейных фотонных кристаллов, в которых одномерная периодичность обеспечивает компенсацию фазового рассогласования взаимодействующих волн, так называемый эффект квази-волнового синхронизма, и способна существенно улучшить эффективность нелинейного преобразования частот [1]. Двумерно-периодические структуры открывают дополнительные возможности для согласования нелинейного взаимодействия волн, распространяющихся в разных направлениях [2]. Много усилий было приложено для увеличения эффективности преобразования [3], в том числе с учетом неидеальности периодической структуры [4] и сопутствующих нелинейных процессов, таких как формирование быстро осциллирующих солитонов [5]. В последние годы доменные структуры в сегнетоэлектриках оказались интересными и для наноэлектроники в связи с особыми электрическими свойствами доменных стенок, которые делают эти структуры перспективными для энергонезависимой памяти с высокой плотностью записи [6]. Большое внимание уделяется различным способам управления стенками: как путем точечного облучения сфокусированным электронным пучком [7], так и оптическими методами [8]. Помимо доменных стенок предлагается также использовать и форму са-

мих доменов для кодирования информации с помощью последовательности треугольных электрических импульсов [9].

Создание доменных структур с характерным масштабом порядка десяти микрометров возможно путем приложения электрического напряжения к структурированным электродам, нанесенным на поверхность сегнетоэлектрического кристалла [10]. Формирование структур субмикронного масштаба (так называемых микродоменных структур) требует качественно иных подходов и может осуществляться на атомно-силовом микроскопе (АСМ) за счет приложения высокого напряжения к наноразмерному острию зонда [11, 12]. Облучая малые участки кристаллической поверхности сфокусированным электронным пучком на растровом электронном микроскопе, можно добиться формирования пространственного заряда, локализованного в приповерхностной области и индуцирующего электрические поля, достаточные для локального переключения знака спонтанной поляризации [13, 14].

В связи с этим особую важность приобрела проблема диагностики доменных структур [15]. Достаточно информативной оказывается визуализация доменов при химическом травлении кристаллов кислотами, основанная на том, что участки поверхности, перпендикулярные вектору спонтанной поляризации, имеют электрический заряд, знак которого зависит от направления поляризации, что обеспечивает селективность по скорости травления доменов разного знака [16, 17]. Наличие поверхностного заряда также предоставляет возможность неразрушающей диагностики доменов декорированием их коллоидными частицами [16] и нематическими жидкими кристаллами [18, 19]. Активно развивается прецизионная реконструкция доменных структур методами атомно-силовой микроскопии [12], которая позволяет различать и домены со спонтанной поляризацией вдоль поверхности [20]. Тем не менее перечисленные методы позволяют идентифицировать области выхода доменов на поверхность, но не дают информации о пространственном расположении доменных стенок в объеме кристалла. В большинстве случаев достоверной информации о глубине и форме поперечного сечения микродоменов, созданных в приповерхностных областях кристаллов, просто нет.

---

**А.В.Кондратов.** Институт кристаллографии им. А.В.Шубникова, ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН, Россия, 119333 Москва, Ленинский просп., 59; e-mail: kondratov.aleksey@gmail.com  
**М.В.Горкунов.** Институт кристаллографии им. А.В.Шубникова, ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН, Россия, 119333 Москва, Ленинский просп., 59; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31;

Поступила в редакцию 10 июля 2018 г., после доработки – 29 октября 2018 г.

---

Возможность оптической визуализации объемных доменных структур связана с тем, что направление спонтанной поляризации не сказывается напрямую на линейных оптических свойствах кристаллов, но определяет знак ключевых констант квадратичной нелинейности. Так, пространственные изменения направления спонтанной поляризации сопровождаются модуляцией знака компонент линейного электрооптического тензора, что делает наблюдаемыми в оптическом микроскопе домены в кристалле, к которому приложено достаточно сильное электрическое поле [21]. С одной стороны, этот метод обеспечивает возможность непрерывного мониторинга движения и переключения знака доменных структур в электрическом поле, а с другой стороны, необходимость приложения поля делает сам процесс измерений влияющим на результат.

Фактически единственную возможность неразрушающей диагностики доменов в объеме кристаллов предоставляет нелинейная оптика. В наиболее простом варианте кристалл подвергается действию сильной волны накачки, фронт которой не испытывает искажений, а фаза нелинейной поляризации, выполняющей роль источника излучения на длине волны второй гармоники (ВГ), оказывается промодулированной в пространстве синхронно с направлением вектора спонтанной поляризации. Это позволяет, в частности, наблюдать относительно большие домены напрямую в режиме конфокальной микроскопии ВГ [22], в котором домены с различным направлением поляризации приобретают различный видимый контраст на длине волны ВГ за счет интерференции волны, излучаемой поляризованным доменом, и волны, исходящей от однородной нелинейной подложки или от неполяризованного объема кристалла [23]. Диагностика доменных структур меньшего размера возможна по картинам распределения интенсивности ВГ в режиме нелинейного рассеяния. Неупорядоченно перемежающиеся микродомены дают характерную коническую картину диффузного рассеяния [24], тогда как периодические структуры излучают ВГ узконаправленно, в виде пиков нелинейной дифракции [25].

Из общих соображений ясно, что интенсивность пиков нелинейной дифракции содержит ценную информацию не только о периоде, но и о глубине и форме микродоменных структур в объеме кристалла. В настоящей работе решается задача нелинейной дифракции для двух практически важных случаев ориентации полярной оси кристалла – параллельно и перпендикулярно его поверхности. Проводится анализ картин дифракции и выясняется возможность достоверного определения глубины микродоменов, а также восстановления особенностей формы их поперечного сечения.

## 2. Амплитуды нелинейной дифракции

Рассмотрим однородно поляризованный по объему кристалл, в приповерхностном слое которого созданы доменные структуры с периодом  $2d$  (рис. 1). Предполагается, что домены распространяются под поверхность кристалла на некоторую предельную глубину  $h$ , при этом соседние домены имеют противоположно направленную спонтанную поляризацию. Эти предположения соответствуют двум экспериментальным реализациям записи планарных (приповерхностных) доменов: на неполярной поверхности с помощью облучения электронным пучком

[14] и на полярной – полем зонда АСМ [11, 26], при которых глубина сформировавшихся доменов не превышает нескольких микрометров. В двух наиболее практически важных случаях вектор спонтанной поляризации ориентирован перпендикулярно или параллельно поверхности кристалла и представим в виде  $\mathbf{p}(\mathbf{r}) = p_e z f(x, z)$  (для рис. 1, а) либо как  $\mathbf{p}(\mathbf{r}) = p_e x f(x, z)$  (для рис. 1, б). В обоих случаях функция  $f$  является целочисленной, принимающей значения  $\pm 1$  в пределах доменной структуры с периодом  $2d$  вдоль оси  $x$  и имеющей постоянное значение  $f = 1$  при удалении от поверхности более чем на некоторую предельную глубину  $z > h$ .

Рассмотрим задачу нелинейной дифракции, схематически представленную на рис. 1. Учитывая, что генерация ВГ (на частоте  $2\omega$ ) слабая и происходит в тонкой приповерхностной структуре, пренебрежем ее влиянием на распространение плоской волны накачки на частоте  $\omega$ , падающей на поверхность кристалла под углом  $\theta_0$ . Также пренебрежем искажениями линейных оптических свойств кристалла, вызванными его деформацией в окрестности доменных стенок. С точки зрения симметрии генерация ВГ определяется отсутствием у кристалла локального центра инверсии. В сегнетоэлектрическом кристалле соответствующее понижение симметрии напрямую связано с наличием полярной оси вдоль вектора спонтанной поляризации  $\mathbf{p}$ . Генерация ВГ определяется компонентами тензора третьего ранга квадратичной нелинейной оптической восприимчивости на частотах ВГ и накачки  $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ , который симметричен по двум последним индексам. Наличие трех тензорных комбинаций,  $p_i p_j p_k$ ,  $p_i \delta_{ik}$  и  $(p_i \delta_{ik} + p_k \delta_{ij})$ , определяемых спонтанной поляризацией и удовлетворяющих требованиям симметрии, ука-

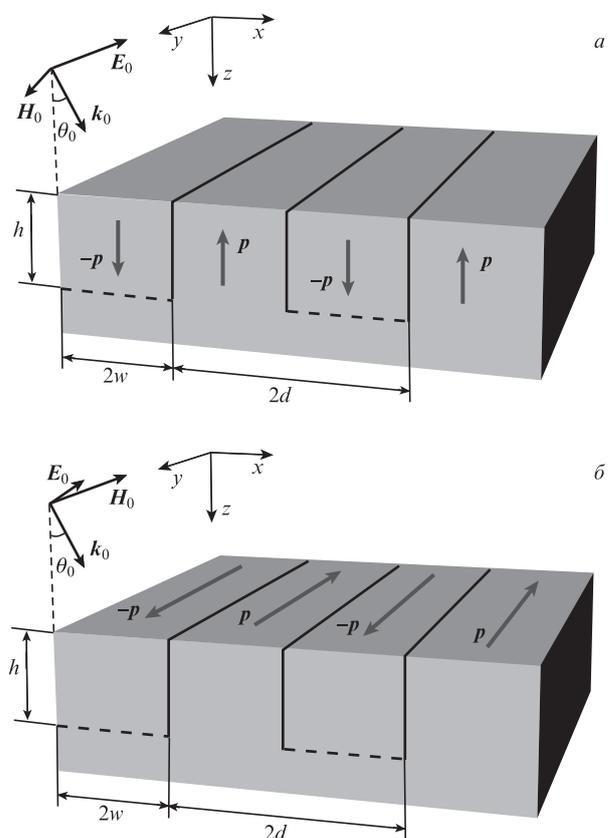


Рис. 1. Домены с вектором спонтанной поляризации, перпендикулярным (а) и параллельным (б) поверхности кристалла.

зывает на существование нескольких независимых нелинейно-оптических коэффициентов. На практике, однако, в подавляющем большинстве одноосных сегнетоэлектрических кристаллов один из таких коэффициентов, коэффициент  $d_{33}$ , отвечающий за взаимодействие световых волн, поляризованных вдоль вектора  $\mathbf{p}$ , намного превышает остальные. В дальнейшем примем для простоты, что пространственно-неоднородная нелинейная восприимчивость в микродоменной структуре следует за спонтанной поляризацией:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\mathbf{r}; 2\omega; \omega, \omega) = 2d_{33}f(x, z)\delta_{i\alpha}\delta_{j\beta}\delta_{k\alpha}, \quad (1)$$

где индекс  $\alpha = z, x$  для ориентаций, показанных на рис. 1, а и б соответственно.

Из соотношения (1), в частности, следует, что эффективная диагностика по-разному ориентированных доменных структур требует различной поляризации падающей волны накачки: структуры со спонтанной поляризацией, ориентированной перпендикулярно поверхности, взаимодействуют с ТМ волной накачки, а структуры с планарно ориентированной поляризацией – с ТЕ волной. Поскольку генерация ВГ за счет нелинейности (1) не меняет состояние поляризации света, для удобства будем в дальнейшем называть рассматриваемые случаи нелинейной ТМ или ТЕ дифракцией.

Иследуем более подробно случай ТМ дифракции, представленный на рис. 1, а. Компоненты электрического поля волны накачки внутри кристалла при этом имеют вид

$$E_{1x}(x, z, t) = E_{1x}\cos(k_{1z}z + k_{1x}x - \omega t), \quad (2)$$

$$E_{1z}(x, z, t) = E_{1z}\cos(k_{1z}z + k_{1x}x - \omega t),$$

где  $k_{1x} = (\omega/c)\sin\theta_0$ ;  $k_{1z} = \sqrt{\varepsilon_1\omega^2/c^2 - k_{1x}^2}$ ;  $\varepsilon_1$  – диэлектрическая проницаемость кристалла на частоте накачки, анизотропией которого мы пренебрегаем;  $E_{1x}$  и  $E_{1z}$  – вещественные амплитуды волны накачки в кристалле, которые выражаются через амплитуду  $E_0$  волны, падающей на кристалл извне, как

$$E_{1x} = \frac{c}{\omega} \frac{2k_{1z}\cos\theta_0}{\varepsilon_1\cos\theta_0 + \sqrt{\varepsilon_1 - \sin^2\theta_0}} E_0, \quad (3)$$

$$E_{1z} = -\frac{c}{\omega} \frac{2k_{1x}\cos\theta_0}{\varepsilon_1\cos\theta_0 + \sqrt{\varepsilon_1 - \sin^2\theta_0}} E_0.$$

Распространяясь в глубь кристалла, эта плоская волна создает нелинейную поляризацию вдоль оси  $z$

$$P_z^{\text{nl}}(x, z, t) = 2d_{33}f(x, z)E_{1z}^2(x, z, t), \quad (4)$$

которая излучает волны на частоте ВГ. Система уравнений Максвелла для полей ВГ содержит источник в виде распределенного в кристалле тока, осциллирующего вдоль оси  $z$  на частоте  $2\omega$  с амплитудой

$$j_{2z}^{\text{nl}}(x, z) = -i\omega d_{33}E_{1z}^2f(x, z)\exp[2i(k_{1z}z + k_{1x}x)]. \quad (5)$$

Конкретный вид полей ВГ можно найти, решая волновые уравнения для амплитуд магнитного поля  $H_{2y}$ , в кристалле (т. е. при  $z > 0$ ),

$$\left(\Delta + \frac{4\omega^2}{c^2}\varepsilon_2\right)H_{2y}(x, z) = \frac{4\pi}{c}\frac{\partial}{\partial x}j_{2z}^{\text{nl}}(x, z), \quad (6)$$

и над кристаллом (при  $z < 0$ ),

$$\left(\Delta + \frac{4\omega^2}{c^2}\varepsilon_2\right)H_{2y}(x, z) = 0, \quad (7)$$

где  $\varepsilon_2$  – диэлектрическая проницаемость кристалла на частоте ВГ. Решения уравнений удовлетворяют граничным условиям непрерывности  $H_{2y}$  и  $(1/\varepsilon)\partial H_{2y}/\partial z$  на поверхности кристалла при  $z = 0$ .

В рамках формализма функции Грина найдем магнитное поле ВГ в виде

$$H_{2y}(x, z) = \frac{4\pi}{c}\int_{-\infty}^{\infty} dx' \int_0^{\infty} dz' G(x - x', z, z') \frac{\partial}{\partial x'} j_{2z}^{\text{nl}}(x', z'), \quad (8)$$

где функция Грина  $G$  в кристалле удовлетворяет волновому уравнению с источником в виде бесконечно тонкой нити

$$\left(\Delta + \frac{4\omega^2}{c^2}\varepsilon_2\right)G(x - x', z, z') = \delta(x - x')\delta(z - z'), \quad (9)$$

а вне кристалла – однородному волновому уравнению (7) и тем же граничным условиям, что и магнитное поле. Представляя функцию Грина в виде интеграла Фурье по продольной координате,

$$G(x - x', z, z') = \frac{1}{2\pi} \int dq \exp[iq(x - x')] G(q, z, z'), \quad (10)$$

и используя известный общий вид диадной функции Грина для границы раздела двух сред [27], получаем, что поле, создаваемое над кристаллом ( $z < 0$ ) тонкой нитью, излучающей из глубины кристалла ( $z' > 0$ ), имеет фурье-образ

$$G(q, z, z') = -\frac{i}{\kappa_0(q)\varepsilon_2 + \kappa(q)} \exp[i\kappa(q)z' - i\kappa_0(q)z], \quad (11)$$

где  $\kappa_0(q) = \sqrt{4\omega^2/c^2 - q^2}$  и  $\kappa(q) = \sqrt{(4\omega^2/c^2)\varepsilon_2 - q^2}$ .

Подстановка выражения (11) в интеграл Фурье (10) позволяет представить в общем виде магнитное поле ВГ (8) для тока (5), соответствующего нелинейному рассеянию на произвольной доменной структуре, задаваемой некоторой функцией  $f(x, z)$ . Для описания узконаправленной нелинейной дифракции на периодической доменной структуре рассмотрим периодическую функцию  $f$  с периодом  $2d$ , которую можно представить в виде дискретного ряда Фурье

$$f(x, z) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} f_n(z) \exp(i\pi n \frac{x}{d}), \quad (12)$$

где

$$f_n(z) = \frac{1}{2d} \int_{-d}^d f(x, z) \exp(-i\pi n \frac{x}{d}) dx.$$

В этом случае магнитное поле ВГ (8) также принимает вид дискретной суммы плоских волн:

$$H_{2y}(x, z) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} H_n \exp[iq_n x - i\kappa_0(q_n)z],$$

выходящих из кристалла и имеющих компоненту волнового вектора вдоль поверхности  $q_n = 2k_{1x} + \pi n/d$ , т. е. вы-

ходящих под углом отражения  $\theta_n$ , удовлетворяющим условию Брэгга нелинейной дифракции

$$\sin \theta_n = \sin \theta_0 + \frac{\lambda n}{d}, \quad (13)$$

где  $\lambda = 2\pi c/\omega$  – длина волны света в вакууме на частоте накачки.

Амплитуда магнитного поля плоской волны  $n$ -го порядка нелинейной дифракции дается выражением

$$H_n = -4\pi \frac{i\omega}{c} d_{33} E_{1z}^2 \frac{q_n}{\varepsilon_2 \kappa_0(q_n) + \kappa(q_n)} \times \int_0^\infty dz' \exp\{i[\kappa(q_n) + 2k_{1z}]z'\} f_n(z'), \quad (14)$$

а интенсивность этой волны  $I_n = (c/4\pi)|H_n|^2$  пропорциональна квадрату интенсивности волны накачки  $I_0 = (c/4\pi)|E_0|^2$ .

Рассмотрение нелинейной ТЕ дифракции на доменной структуре, показанной на рис. 1, б, проводится аналогично. В качестве источника, излучающего ВГ, используется нелинейный ток, направленный вдоль оси  $y$ :

$$j_{2y}^{nl}(x, z) = -i\omega d_{33} E_{1y}^2 f(x, z) \exp[2i(k_{1z}z + k_{1x}x)], \quad (15)$$

где амплитуда электрического поля волны накачки в кристалле

$$E_{1y} = \frac{2 \cos \theta_0}{\cos \theta_0 + \sqrt{\varepsilon_1 - \sin^2 \theta_0}} E_0.$$

Поля излученной ВГ можно рассчитать, решая волновые уравнения для амплитуд электрического поля  $E_{2y}$  в кристалле (при  $z > 0$ ),

$$\left(\Delta + \frac{4\omega^2}{c^2} \varepsilon_2\right) E_{2y}(x, z) = -\frac{8\pi i \omega}{c^2} j_{2y}^{nl}(x, z), \quad (16)$$

и над кристаллом (при  $z < 0$ ),

$$\left(\Delta + \frac{4\omega^2}{c^2}\right) E_{2y}(x, z) = 0, \quad (17)$$

с граничными условиями непрерывности  $E_{2y}$  и  $\partial E_{2y}/\partial z$  на поверхности кристалла при  $z = 0$ . Фурье-образ функции Грина для такой задачи также следует из общего вида двудной функции Грина для границы раздела двух сред [27]

$$G(q, z, z') = -\frac{i}{\kappa_0(q)\varepsilon_2 + \kappa(q)} \exp[i\kappa(q)z' - i\kappa_0(q)z], \quad (18)$$

и вычисления, полностью аналогичные предыдущим, позволяют найти амплитуды электрического поля плоской волны  $n$ -го порядка нелинейной дифракции в виде

$$E_n = -8\pi \frac{\omega^2}{c^2} d_{33} E_{1y}^2 \frac{1}{\kappa_0(q_n) + \kappa(q_n)} \times \int_0^\infty dz' \exp\{i[\kappa(q_n) + 2k_{1z}]z'\} f_n(z'), \quad (19)$$

которые определяют интенсивности волн ТЕ дифракции  $I_n = (c/4\pi)|E_n|^2$ .

### 3. Роль глубины и ширины доменов

Как видно из полученных амплитуд нелинейной дифракции (14) и (19), для обеих рассматриваемых геометрий интенсивность дифракции  $n$ -го порядка оказывается пропорциональной квадрату модуля безразмерного комплексного структурного фактора

$$F_n = \frac{1}{2d} \frac{\omega}{c} \times \int_0^\infty dz \int_{-d}^d dx f(x, z) \exp\{i[\kappa(q_n) + 2k_{1z}]z - i\pi n x/d\}, \quad (20)$$

который содержит информацию о форме доменной структуры, заданной целочисленной функцией  $f(x, z)$ .

Рассмотрим простейший случай решетки доменов прямоугольного сечения с глубиной  $h$  и шириной  $2w$ , меньшей периода структуры  $2d$ . В действительности в объеме кристалла домены могут быть совершенно разной формы: и полуэллипсоидальной, и конической, как следует из теоретических расчетов, основанных на минимизации соответствующей свободной энергии [28]. Однако, как будет показано далее, в случае прямоугольного сечения задача нелинейной дифракции имеет точное аналитическое решение, позволяющее проследить основные закономерности, тогда как для рассмотрения доменов произвольной формы достаточно будет ввести функцию отклонения профиля от прямоугольного. Таким образом, в пределах одного периода для  $|x| < d$  получаем

$$f(x, z) = \begin{cases} 1, & z > h, \\ -1, & |x| \leq w, z \leq h, \\ 1, & |x| > w, z \leq h. \end{cases} \quad (21)$$

Это соответствует выражению

$$|F_n|^2 = \frac{16}{\pi^2 n^2} \frac{\omega^2}{c^2} \frac{1}{[\kappa_0(q_n) + 2\kappa_{1z}]^2} \times \sin^2\left(\pi n \frac{w}{d}\right) \sin^2\left\{\frac{h}{2}[\kappa(q_n) + 2\kappa_{1z}]\right\}, \quad (22)$$

которое определяет простую зависимость интенсивности нелинейной дифракции от глубины доменной структуры  $h$  и ее скважности  $w/d$ .

В частности,  $|F_n|^2 = 0$  при выполнении условия

$$n \frac{w}{d} = l \quad (23)$$

с произвольным целым  $l$ , что означает полное исчезновение  $n$ -го порядка дифракции независимо от угла падения волны накачки при равенстве скважности доменной структуры  $w/d$  некоторому рациональному числу со знаменателем  $n$ . Поскольку отношение  $w/d$  всегда меньше единицы, то такое полное исчезновение определенного порядка дифракции возможно только для  $|n| > 1$ .

Последний множитель в выражении (22) дает возможность неразрушающей диагностики глубины доменов вследствие того, что интенсивность  $n$ -го порядка дифракции тождественно обращается в нуль при выполнении условия

$$[\kappa(q_n) + 2\kappa_{1z}]h = 2\pi m \quad (24)$$

с произвольным целым  $m$ . С учетом принятых ранее обозначений это имеет место при таком угле падения волны накачки  $\theta_0$ , что

$$h = \frac{\lambda m}{2} \left[ \sqrt{\varepsilon_2 - \left( \sin \theta_0 + n \frac{\lambda}{4d} \right)^2} + \sqrt{\varepsilon_1 - \sin^2 \theta_0} \right]^{-1}. \quad (25)$$

Следовательно, глубину доменов прямоугольного сечения несложно найти, зная набор значений углов  $\theta_0$ , при которых исчезает тот или иной порядок дифракции.

В качестве практической иллюстрации на рис.2 представлены интенсивности первых порядков нелинейной дифракции  $I_{\pm 1}$  на периодической доменной структуре в кристалле ниобата лития. Длины волн накачки и ВГ приняты равными 1064 и 532 нм соответственно, а слабая анизотропия линейных оптических свойств этого кристалла позволяет описывать его для простоты изотропными диэлектрическими проницаемостями, равными значениям обыкновенных компонент соответствующего тензора на этих длинах волн:  $\varepsilon_1 = 4.97$  и  $\varepsilon_2 = 5.23$  [29]. Из известных значений трех ненулевых компонент тензора нелинейной восприимчивости для ниобата лития [30],  $d_{33} = -98 \times 10^{-9}$  ед. СГСЭ,  $d_{31} = 14 \times 10^{-9}$  ед. СГСЭ,  $d_{22} = 7.4 \times 10^{-9}$  ед. СГСЭ, первая является доминирующей, что оправдывает использование упрощенного вида (1) тензора нелинейной восприимчивости. Интенсивности  $I_{\pm 1}$  для геометрий, отвечающих ТЕ и ТМ дифракциям, показаны

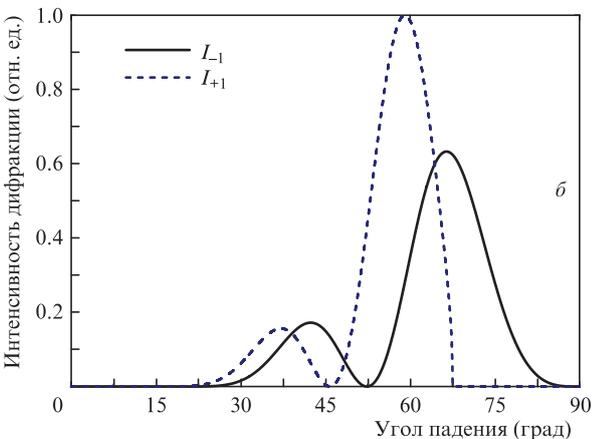
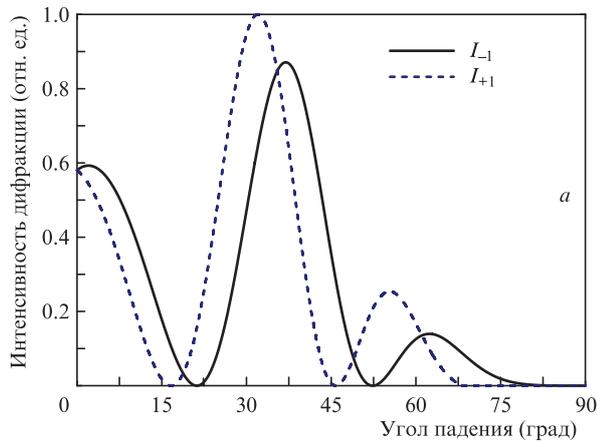


Рис.2. Зависимости относительных интенсивностей первых порядков нелинейной дифракции  $I_{\pm 1}$  от угла падения волны накачки на кристалл ниобата лития с прямоугольной доменной структурой, имеющей глубину 2.5 мкм, период 7 мкм и скважность 1/7, для геометрий, соответствующих ТЕ (а) и ТМ (б) дифракциям.

на рис.2,а и б соответственно. В случае ТЕ дифракции видны четкие минимумы в областях  $15^\circ - 20^\circ$  и  $45^\circ - 50^\circ$ , отвечающие углам падения, полученным из выражения (25). Для ТМ дифракции минимумы в области  $15^\circ - 20^\circ$  не видны из-за близкой к нулю интенсивности при малых углах вследствие специфики геометрии и пропорциональности величин  $I_{\pm 1}$  и  $|E_{1z}|^4$ . В обоих случаях интенсивность дифрагировавшей волны для  $n = 1$  становится равной нулю при угле падения, меньшем  $90^\circ$ , что соответствует отрицательному подкоренному выражению в формуле для  $\kappa_0(q_n)$ , т. е. при полном внутреннем отражении.

#### 4. Роль формы поперечного сечения доменов

Наличие в структурном факторе (20) явной зависимости от поперечного сечения доменов, описываемого функцией  $f(x, z)$ , позволяет рассматривать нелинейную дифракцию и как способ диагностики формы доменных стенок в глубине кристалла. Для наглядной иллюстрации используем набор сечений доменов, имеющих одинаковую скважность  $w/d$  при выходе на поверхность кристалла и одинаковую предельную глубину  $h$ , но различающихся формой стенок. Эта форма описывается при  $z > 0$  в пределах одного периода структуры ( $|x| < d$ ) функцией

$$f(x, z) = \begin{cases} 1, & z > h, \\ -1, & |x| \leq w - \Delta w(z), \quad z \leq h, \\ 1, & |x| > w - \Delta w(z), \quad z \leq h, \end{cases} \quad (26)$$

где

$$\Delta w(z) = w \left[ 1 - \left( 1 - \frac{z}{h} \right)^{1/N} \right] \quad (27)$$

– отклонение доменных стенок от вертикальной формы;  $N$  – натуральное число, задающее различную форму стенок: от треугольной при  $N = 1$  и гладкой параболической при  $N = 2$ , до резкой прямоугольной в пределе  $N \rightarrow \infty$ . Соответствующие структурные факторы (20) тогда можно представить в виде

$$F_n = -\frac{\omega}{c} \frac{2}{\pi n} \int_0^h dz \sin \left[ \frac{w - \Delta w(z)}{d} \right] \exp \{ i[\kappa(q_n) + 2k_{1z}]z \}, \quad (28)$$

и нахождение их численных значений позволяет рассчитать интенсивности различных порядков нелинейной дифракции.

В качестве примера на рис.3 представлены зависимости, аналогичные приведенным на рис.2,б, с идентичными геометрическими параметрами доменной структуры  $h$ ,  $w$  и  $d$ , но для различных профилей поперечного сечения. Видно, что при малых отклонениях формы доменов ( $N = 20$ ) угловая зависимость интенсивности дифракции практически эквивалентна таковой в случае идеальных прямоугольных доменов. Для формы доменов, соответствующей  $N = 5$ , происходит дальнейшее сглаживание провалов в угловой зависимости интенсивности, а ее нули становятся локальными минимумами, однако их положение все еще отвечает выражению (25) и позволяет определить глубину доменной структуры. В случае как параболических ( $N = 2$ ), так и треугольных ( $N = 1$ ) доменов наблюдается полное размытие провалов в угловой зависимости интенсивности дифракции, и определение их глубины оказывается невозможным.

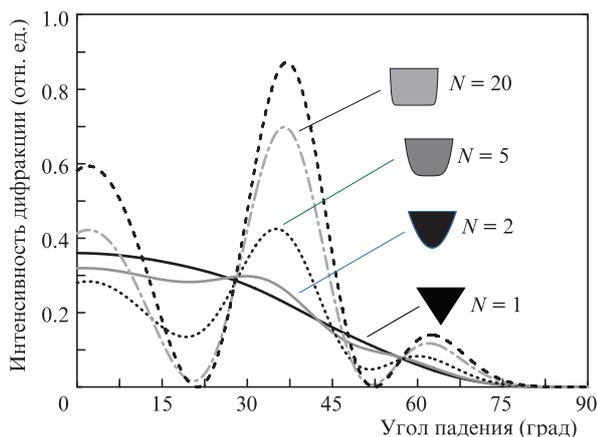


Рис.3. Влияние формы поперечного сечения доменов на нелинейную дифракцию: зависимости относительной интенсивности первого порядка ТЕ дифракции  $I_{-1}$  от угла падения волны накачки на кристалл ниобата лития с доменной структурой, имеющей глубину 2.5 мкм, период 7 мкм, скважность 1/7 и профили поперечного сечения, соответствующие аналитическому представлению (26) для  $N = 1, 2, 5$  и 20. Штриховая кривая – интенсивность в случае доменов идеальной прямоугольной формы.

## 5. Заключение

Таким образом, нелинейная дифракция позволяет детально реконструировать важнейшие характеристики периодических доменных структур для различных ориентаций спонтанной поляризации относительно поверхности. Наряду с простым условием (13), которое дает возможность определить период структур по направлениям распространения нелинейно дифрагировавших волн, зависимости интенсивности этих волн от угла падения волны накачки позволяют достаточно точно оценить глубину доменной структуры и даже уточнить форму доменных стенок в глубине кристалла.

Наиболее точное определение глубины возможно для периодических доменов прямоугольного сечения, для которых при заданных углах падения волны накачки выполняется условие (25) и исчезают некоторые порядки дифракции. Будучи следствием деструктивной интерференции полей ВГ, излучаемых нелинейными токами на разной глубине, суть используемого интерференционного гашения ВГ та же, что и при контрастировании отдельных крупных доменов в режиме конфокальной микроскопии ВГ [22,23]. Нелинейная дифракция, однако, делает возможным измерение глубины периодически повторяющихся доменов, ширина каждого из которых может быть и существенно меньше длины волны света.

Отклонение формы поперечного сечения доменов от идеально прямоугольной приводит к нарушению условия, необходимого для полного интерференционного гашения ВГ. Как показано выше, глубина провалов в зависимости интенсивности дифрагировавших волн от угла падения волны накачки оказывается довольно чувствительной к изменению формы доменной стенки даже при неизменной двумерной картине выхода доменов на поверхность.

Отметим также, что развитый на основе простых доменных структур теоретический формализм применим и к структурам с гораздо более сложной элементарной ячейкой. Создание таких структур с произвольным регулярным, в том числе суперпериодическим, упорядочени-

ем доменов доступно для современных устройств атомно-силовой и растровой электронной микроскопии. Полученные соотношения позволяют рассчитать эффективность нелинейной дифракции на таких структурах и, например, выяснить условия подавления и усиления определенных ее порядков, что имеет самостоятельную практическую ценность. Так, формирование узконаправленной ВГ, излучаемой в одном направлении, фактически можно рассматривать как нелинейное преломление света.

Авторы выражают благодарность Т.Р.Волк за конструктивную критику и комментарии.

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках выполнения работ по Государственному заданию ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН и Программы повышения конкурентоспособности НИЯУ «МИФИ».

1. Armstrong J.A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P.S. *Phys. Rev.*, **127**, 6 (1962).
2. Berger V. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 4136 (1998).
3. Lim E.J., Fejer M.M., Byer R.L. *Electron. Lett.*, **25**, 3 (1989).
4. Fejer M.M., Magel G.A., Jundt D.H., Byer R.L. *IEEE J. Quantum Electron.*, **28**, 11 (1992).
5. Clausen C.B., Bang O., Kivshar Y.S. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 4749 (1997).
6. Catalan G., Seidel J., Ramesh R., Scott J.F. *Rev. Mod. Phys.*, **84**, 119 (2012).
7. Chen Z., Wang X., Ringer S.P., Liao X. *Phys. Rev. Lett.*, **117**, 027601 (2016).
8. Rubio-Marcos F., Del Campo A., Rojas-Hernandez R.E., Ramirez M.O., Parra R., Ichikawa R.U., Ramajo L.A., Bausá L.E., Fernández J.F. *Nanoscale*, **10**, 705 (2018).
9. Ievlev A.V., Kalinina S.V. *Nanoscale*, **7**, 11040 (2015).
10. Broderick N.G.R., Ross G.W., Offerhaus H.L., Richardson D.J., Hanna D.C. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 19 (2000).
11. Rosenman G., Urenski P., Agronin A., Rosenwaks Y., Molotskii M. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 103 (2003).
12. Gainutdinov R.V., Volk T.R., Lysova O.A., Razgonov I.I., Tolstikhina A.L., Ivleva L.I. *Appl. Phys. B*, **95**, 505 (2009).
13. Restoin C., Darraud-Taupiac C., Decossas J.L., Vareille J.C., Couderc V., Barthélémy A., Martinez A., Hauden J. *Appl. Opt.*, **40**, 6056 (2001).
14. Kokhanchik L.S., Borodin M.V., Shandarov S.M., Burimov N.I., Shcherbina V.V., Volk T.R. *Phys. Solid State*, **52**, 1722 (2010).
15. Soergel E. *Appl. Phys. B*, **81**, 729 (2005).
16. Pearson G.L., Feldmann W.L. *J. Phys. Chem. Solids*, **9**, 28 (1958).
17. Stadler H.L. *J. Appl. Phys.*, **34**, 570 (1963).
18. Furuhashi Y., Toriyama K. *Appl. Phys. Lett.*, **23**, 361 (1973).
19. Qi M., Tikhomirova N.A., Shuvalov L.A. *J. Appl. Phys.*, **79**, 3188 (1998).
20. Volk T.R., Kokhanchik L.S., Gainutdinov R.V., Bodnarchuk Y.V., Shandarov S.M., Borodin M.V., Lavrov S.D., Liu H., Chen F. *J. Lightwave Technol.*, **33**, 4761 (2015).
21. Müller M., Soergel E., Buse K. *Opt. Lett.*, **28**, 2515 (2003).
22. Kaneshiro J., Kawado S., Yokota H., Uesu Y., Fukui T. *J. Appl. Phys.*, **104**, 054112 (2008).
23. Lavrov S.D., Kokhanchik L.S., Gainutdinov R.V., Elshin A.S., Bodnarchuk Y.V., Mishina E.D., Volk T.R. *Opt. Mater.*, **75**, 325 (2018).
24. Tunyagi A.R., Ulex M., Betzler K. *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 243901 (2003).
25. Simagina L.V., Mishina E.D., Semin S.V., Ilyin N.A., Volk T.R. *J. Appl. Phys.*, **110**, 052015 (2011).
26. Molotskii M. *J. Appl. Phys.*, **93**, 6234 (2003).
27. Novotny L., Hecht B. *Principles of Nano-Optics* (Cambridge: Cambridge University Press, 2012).
28. Starkov A.S., Starkov I.A. *J. Appl. Phys.*, **118**, 072010 (2015).
29. Zelmon D.E., Small D.L., Jundt D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 3319 (1997).
30. Boyd R.W. *Nonlinear Optics* (San Diego: Academic Press, 2003, pp 32–48).