

В. Д. АНЦЫГИН, В. И. БЕЛИНИЧЕР, И. Ф. КАНАЕВ,
В. К. МАЛИНОВСКИЙ, Б. И. СТУРМАН
(Новосибирск)

ПРОСТРАНСТВЕННЫЕ И ВРЕМЕННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ОПТИЧЕСКОЙ ЗАПИСИ В НЕЛЕГИРОВАННЫХ КРИСТАЛЛАХ LiNbO_3

Как известно, в сегнетоэлектрических кристаллах ниобата лития существует эффект оптического повреждения (ЭОП) — изменение показателя преломления под действием света. Предложено несколько различных моделей для его объяснения. Отсутствие многих конкретных данных по LiNbO_3 не позволяет предсказать заранее область применимости каждой из них, в то время как вопрос о количественных вкладах каждого из механизмов повреждения важен для практического применения кристаллов в оптических устройствах.

В настоящей статье мы приводим экспериментальные данные, выявляющие роль различных механизмов записи в нелегированных кристаллах LiNbO_3 . Показано, что ЭОП вызывается дрейфом электронов проводимости во внешнем электрическом поле или пирополе и процессом диффузии.

1. В одной из первых работ, посвященных исследованию ЭОП в кристаллах LiNbO_3 [1], было постулировано существование внутреннего электрического поля до освещения, параллельного оптической оси. Согласно [1], электроны, возбужденные светом из глубоких локальных центров, дрейфуют в этом поле и компенсируют его в области освещения. Изменение величины внутреннего поля в освещенных участках приводит к изменению показателя преломления Δn вследствие линейного электрооптического эффекта.

В предложенной модели два основных утверждения:

- 1) существование ЭОП в электрических полях;
- 2) наличие в кристалле электрического поля до освещения.

Эти предположения легко проверить экспериментальным путем.

Из работ Чена и других авторов известно, что оптическая запись происходит только при определенной ориентации направления записываемого пучка и кристаллографических осей. Запись отсутствует при распространении облучающего пучка света вдоль оптической оси «С». Приложение внешнего поля, \perp «С», должно изменить ситуацию, если первое предположение Чена справедливо. Действительно, облучение кристалла светом в такой геометрии приводит к появлению ЭОП. Запись проводилась светом аргонового лазера $\lambda=514,5$ нм, сечение пучка 1×8 мм, длинная сторона записываемого прямоугольника \perp внешнему полю. Сечение пучка и его ориентация выбраны из расчета уменьшения влияния краевых эффектов. Измерение величины Δn в процессе записи проводилось в интерферометре Майкельсона. Получены следующие результаты:

- 1) предельные величины $\Delta n_{\text{пр}}$ не зависят от интенсивности и определяются только приложенным полем;
- 2) $\Delta n_{\text{пр}}$ равна по величине изменению показателя преломления Δn , вызванному электрическим полем E , т. е.

$$\Delta n_{\text{пр}} = -\Delta n_y = n_0^3 r_{22} E_x, \quad (1)$$

где Δn_y — изменение показателя преломления для луча, поляризованного $\parallel y$. Подобная связь между $\Delta n_{\text{пр}}$ и величиной приложенного поля наблюдалась и в других геометриях записи.

Отметим, что при чисто полевой записи (внешнее поле $\perp C$) в нелегированных кристаллах характерное время релаксации «памяти» > 1 месяца. Отсюда следует, что сопротивление образцов $\sim 10^{18}$ Ом.

Наличие внутренних полей $E_{вн}$ в кристалле до засветки можно определить по методике, описанной в работе [2]. Свободно вращающийся вокруг вертикальной оси образец помещается в электрическое поле. Направление $E_{вн}$ и его величина определялись по ориентации кристалла во внешнем поле и периоду колебаний вблизи равновесия.

Из измерений внутренних полей в предварительно отожженных незасвеченных кристаллах установлено:

1) величина $E_{вн}$ не превышает 10—15 кВ/см, что совпадает с пробойным полем;

2) в зависимости от условий и продолжительности хранения после отжига величина $E_{вн}$ меняется от 15 кВ/см до нуля. Причиной возникновения полей в этом случае является пирозэффект. При работе с кристаллом в термостате изменением температуры можно компенсировать внутренние электрические поля;

3) облучение кристаллов с $E_{вн}=0$ также приводило к возникновению ЭОП. В работе [2] показано, что изменение в этом случае вызывается пирополем, возникающим в результате нагрева образца излучением;

4) в остывшем после облучения кристалле также обнаруживаются поля, но они локализованы в области записи и их распределение зависит от геометрии записывающего пучка. Из сопоставления величины $\Delta n_{пр}$ с температурными изменениями и измеренных полей записи в [2] сделан вывод о пирозлектрическом механизме записи в ниобате лития.

Следует отметить, что погрешность измерения полей и температуры, вызванная приближенностью использованных формул, разбросом литературных данных по пирозлектрическим коэффициентам [3] и, наконец, неточностью самого измерения, составляла ~ 2 . Поэтому для определения вклада в изменение n других механизмов записи необходимы, вообще говоря, дополнительные исследования.

II. Модель, предложенная Джонстоном [4] и развитая затем в работах [5], предполагает, что изменение показателя преломления происходит в результате изменения спонтанной поляризации кристалла за счет перераспределения электронов по связанным состояниям.

Эффекты, связанные с поляризацией, локализованы в области засветки, это дает возможность отличить пирополевую запись от поляризационной. Действительно, кристаллы в условиях наших экспериментов, когда засвечивалась $\approx 1/5$ часть всего объема, вследствие хорошей теплопроводности нагреваются как целое. Поэтому пирополе создается зарядами, локализованными вблизи поверхности кристалла, и может быть закорочено.

Облучение закороченных образцов пучком аргонового лазера мощностью ≤ 50 Вт/см², действительно, не вызывало ЭОП. Это показывает, что эффектами, связанными с фотоиндуцированной поляризацией, в нелегированных кристаллах можно пренебречь (не исключено, однако, что при импульсном облучении большой мощности поляризационные эффекты могут быть существенны). Отметим, что описанные эксперименты исключают вклад в Δn объемного фотовольтаического эффекта [6], поскольку он также имеет локальный характер.

III. До сих пор мы рассматривали характеристики ЭОП при облучении кристалла равномерными световыми пучками, имеющими в сечении размеры $\approx 1/5$ сечения кристалла (8×12 мм). В этом случае диффузией свободных электронов можно пренебречь [7]. Однако учет диффузии необходим при записи голографических решеток, поскольку, даже при малых величинах оптического повреждения ($\Delta n \sim 10^{-5}$), можно получить значительные эффективности дифракции.

Для выяснения вклада в ЭОП диффузионного механизма мы производили запись голографической решетки в закороченных кристаллах LiNbO_3 , исключив таким образом пироэлектрические поля. Если в этом случае процесс записи определяет диффузия, то записанная решетка $\Delta n(x)$ должна быть смещена относительно синусоидального распределения интенсивности света на $1/4$ шага [7]. Влияние на запись прочих эффектов должно привести к отличию фазы смещения φ от ее диффузионного значения.

Для определения величины фазы мы использовали метод сканирования длины оптического пути в одном из записывающих пучков, что соответствует смещению интерференционной световой картины относительно голограммы.

Интенсивность световых пучков I_s, I_R на выходе при равенстве их I_0 на входе выражается соотношением [7]

$$I_{R, s}(t) = I_0 [1 \pm 2(\eta(1-\eta))^{1/2} \sin \varphi(t)], \quad (2)$$

где η — эффективность дифракции. Применительно к нашему случаю (2) имеет вид:

$$I_{R, s}(t, l) = I_0 [1 \pm (\eta(1-\eta))^{1/2} \sin (\varphi(t) + \varphi(l))]. \quad (3)$$

Изменение длины оптического пути l от 0 до λ с одновременным измерением $I_{R, s}(t_i)$ позволяет из (3) определить $\varphi(t_i)$. Схема этого эксперимента приведена на рис. 1.

Следует отметить, что при измерениях наблюдаются значительные колебания амплитуд $I_{R, s}$. Эти флюктуации уменьшаются практически до нуля, если объем, занятый световыми пучками от источника до объекта, на котором ведется запись, герметизируется.

Эксперименты по записи голографических решеток на закороченных кристаллах показали следующее:

1. Величина смещения φ в процессе экспозиции не обнаруживает заметных отклонений от $\pi/2$ (рис. 2).

2. Величины $\varphi(t)$, $\Delta I_{R, s}(t)/I_0$, $\eta(t)$ в эксперименте равны $\sim \pi/2$, $\sim 20\%$, $\sim 2\%$ соответственно и удовлетворяют соотношению (2) (рис. 3, а).

3. Предельная эффективность η не зависит от I_0 (исследованы I_0 до ~ 50 Вт/см²).

4. Величина амплитуды электрического поля E , обусловленная диффузионным механизмом, при шаге решетки в 1 мкм равна ~ 1400 В/см.

5. Многократный процесс запись — стирание (светом) не приводит к уменьшению величины $\Delta n_{\text{пр}}$.

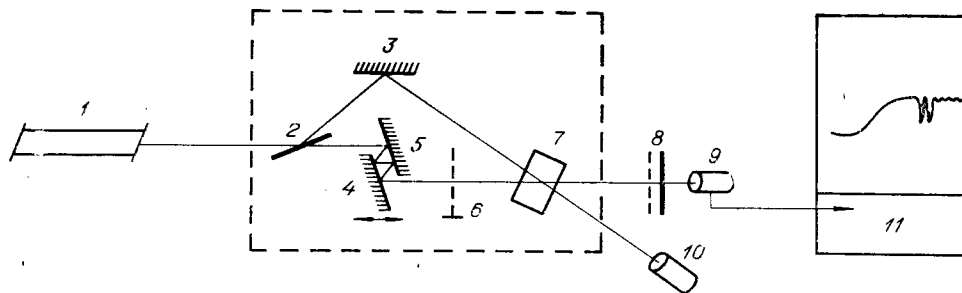


Рис. 1. Схема экспериментальной установки по исследованию голографической записи: 1 — лазер; 2 — делительная пластина; 3—5 — 100%-ые зеркала; 6 — затвор, перекрывающий луч при измерении величины дифракции; 7 — образец; 8 — фильтры и диафрагма; 9, 10 — фотоумножители; 11 — самописец.

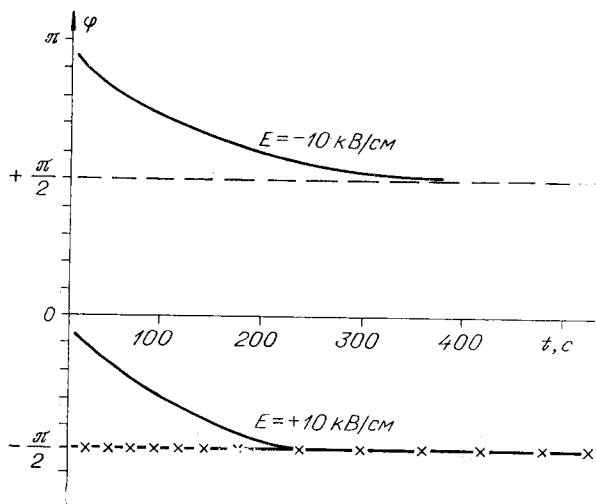


Рис. 2. Зависимость величины смещения φ записываемой решетки относительно интерференционной картины записывающих пучков. Поведение при $E \pm 10$ кВ относится к случаю $I_0 = 10$ Вт/см² (X — экспериментальные точки измерения фазы при записи на закороченном кристалле).

электрона, n_0 — обыкновенный показатель преломления, r_{13} — электрооптический коэффициент, λ , ω — длина волны и частота света, z_0 — толщина голограммы, Θ — угол записи, ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость, κ — коэффициент поглощения.

Из сравнения теории с экспериментом можно определить важную характеристику кристалла — длину диффузии:

$$L = (D\tau)^{1/2} \approx 1 \text{ нм},$$

где D — коэффициент диффузии.

IV. Иное поведение φ и Δn наблюдается в незакороченных кристаллах. Поскольку запись в этом случае определяется электрическими полями, то для получения однозначных результатов эксперименты проводились во внешнем поле. Для уменьшения влияния диффузии исследовалась запись решеток с шагом 3 мкм. Получены следующие результаты:

1. В процессе записи φ меняется от значения, близкого к 0, до $\pi/2$ (см. рис. 2). Полное время выхода φ к $\pi/2$ зависит от интенсивности облучения и величины поля.

2. Эффективность дифракции в процессе экспозиции проходит через максимум. Время достижения максимума намного меньше времени спада. Фазовый сдвиг достигает значения $\pi/2$ в максимуме η и в дальнейшем не изменяется (см. рис. 2, 3, б).

3. Величины $\varphi(t)$, $I_{r,s}(t)$, $\eta(t)$ удовлетворяют соотношению (2) только при малых экспозициях.

Теория записи голограмм в присутствии внешнего поля приводит к соотношениям **:

$$\eta = \eta_{\infty} \left[\frac{E_0^2 \mu^2}{D^2 K^2} J_1^2(\tau) e^{-2\tau} + (1 - e^{-\tau} J_0 - e^{-\tau} J_1)^2 \right]; \quad (6)$$

$$\text{tg } \varphi = -(DK/\mu E_0) (1/J_1(\tau)) [e^{\tau} - J_0(\tau) - J_1(\tau)]. \quad (7)$$

* Вывод формулы дан в приложении.

** Их вывод см. в приложении.

Выполнение пунктов 1, 3 дает основание считать ответственными за запись в закороченных кристаллах процессы диффузии. На рис. 3, а приведены зависимости дифракционной эффективности от времени, полученной в эксперименте (+) и рассчитанной теоретически (сплошная линия) по формуле*

$$\eta(t) = \eta_{\infty} [1 - e^{-\tau} (J_0(\tau) - J_1(\tau))]^2, \quad (4)$$

$$\tau = [(4\pi e \mu \kappa) / (\gamma \epsilon_0 \hbar \omega)] I_0 t;$$

$$\eta_{\infty} = [(\pi^2 n_0^4 r_{13} z_0^2) / (\lambda^2 e)] \times \text{tg}(\Theta/2). \quad (5)$$

Здесь γ^{-1} — время жизни фотовозбужденного

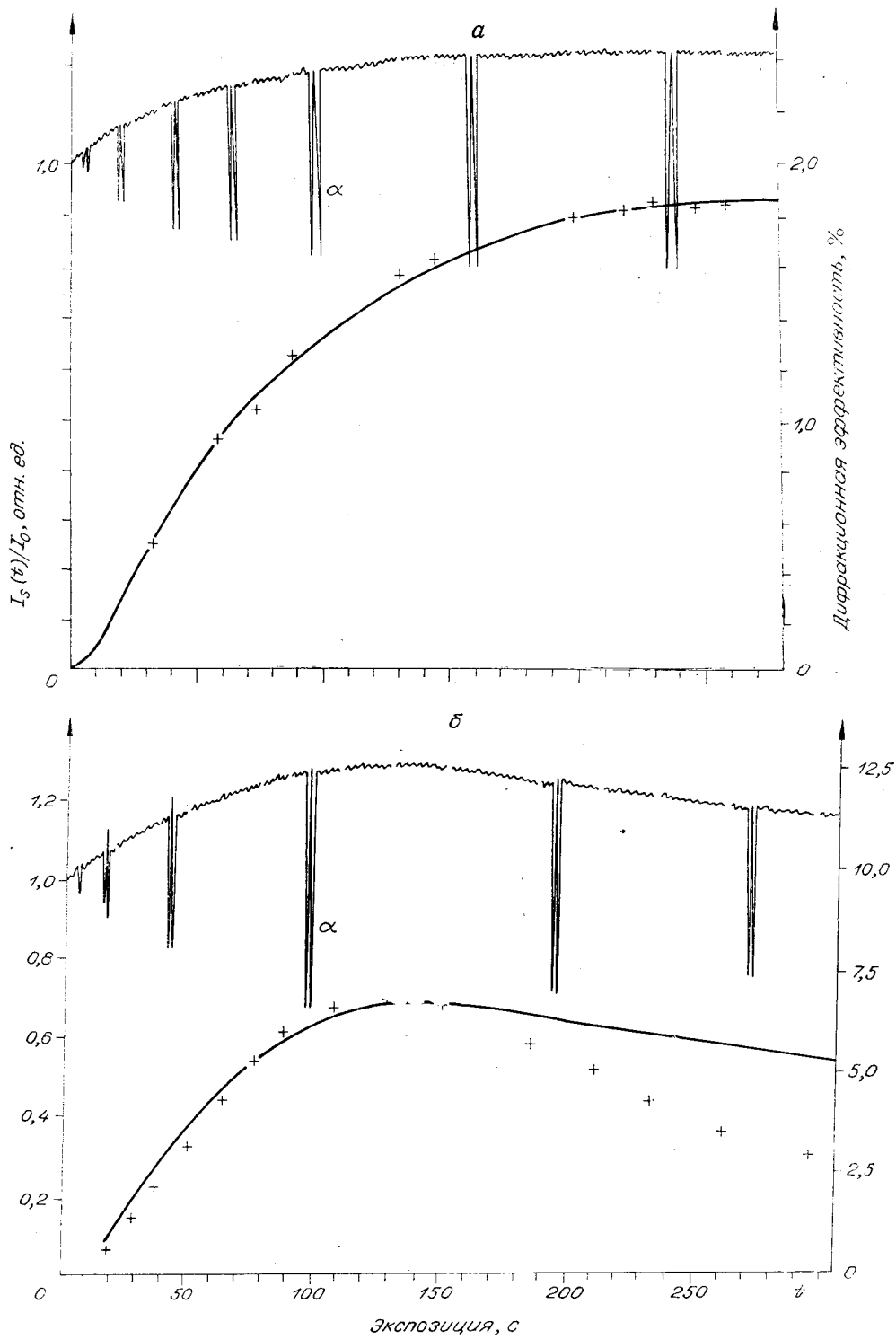


Рис. 3. Поведение $I_{s, R}/I_0$ и η во времени:

a — диффузионный механизм записи голографической решетки ($I_0 \approx 20$ Вт/см², шаг решетки равен 1 мкм); *b* — запись в электрическом поле ($I_0 = 30$ Вт/см², шаг решетки равен 2,5 мкм, $E_0 = 5$ кВ/см); α — функция (3) в разные моменты времени; + — экспериментальные точки дифракционной эффективности.

Эти формулы находятся лишь в качественном согласии с соответствующими экспериментальными зависимостями $\varphi(t)$ и $\eta(t)$. В частности, время релаксации фазы, определенное из формулы (7), оказывается в несколько раз больше экспериментального.

Здесь уместно сделать принципиальное замечание, касающееся анализа экспериментальных данных. Дело состоит в том, что при больших значениях перекачки ($(\Delta I_{S,R}/I_0) \sim 1$) использование формулы (2) для описания характеристик записи неправомерно, поскольку записанная решетка $n(x, z, t)$ не имеет, вообще говоря, ничего общего с плоской и постоянной по глубине периодической структурой. Линии максимумов Δn при дрейфовом механизме искривляются в процессе записи; меняется по глубине кристалла и величина модуляции показателя преломления. Это становится понятным уже из анализа распространения двух пучков света одинаковой интенсивности по голограмме, распределение $\Delta n(x)$ в которой сдвинуто относительно световой решетки на угол $\varphi \neq \pi/2$. В этом случае нетрудно получить соотношения для распределения интенсивности в объеме голограммы:

$$I = 2I_0 [1 + (1 - 4\eta(1 - \eta) \sin^2 \varphi)^{1/2} \cos(Kx + \Phi)]; \quad (8)$$

$$\operatorname{tg} \Phi = (\eta \sin 2\varphi) / (1 - 2\eta \sin^2 \varphi). \quad (9)$$

Из (8) следует, что линии максимума Δn при записи за счет дрейфа будут искривляться. Ясно, что в этом случае необходимо самосогласованное описание пространственно-временных изменений световой интенсивности и Δn . Случай чисто диффузионной записи оказывается наиболее простым, поскольку решетка $\Delta n(x, z, t)$ остается плоской.

Простая картина распределения Δn получается также при малых значениях перекачки, $\left| \frac{I_{S,R}}{I_0} - 1 \right| \ll 1$, когда распределение света в кристалле можно считать заданным. В описанных экспериментах по записи за счет дрейфа отношение I_S/I_R на протяжении кристалла изменялось в 2 раза, т. е. искажение решетки могло быть велико. Этим, по-видимому, и вызваны отклонения от формул (6), (7), наблюдавшиеся в наших экспериментах при больших значениях η .

Приложение

Рассмотрим вывод формул (4), (5), (6), (7). Будем считать распределение интенсивности света I заданным:

$$I = I_0(1 + \cos Kx). \quad (10)$$

Поле E , ответственное за запись, подчиняется уравнению

$$(\partial E / \partial t) + (4\pi e / \epsilon_0) [\mu n E - D(\partial n / \partial x)] = 0. \quad (11)$$

Концентрация электронов в зоне проводимости определяется из уравнения непрерывности

$$(\partial n / \partial t) + (\partial / \partial x) [\mu n E - D(\partial n / \partial x)] = \kappa I - \gamma n, \quad (12)$$

в котором из-за большой величины γ первыми двумя слагаемыми можно пренебречь. Подставляя в (11) $n = \kappa I / \gamma \hbar \omega$ и решая получающееся уравнение, найдем

$$E = E_0 e^{-(t/t_d)(1 + \cos Kx)} + \frac{D}{\mu I} \frac{\partial I}{\partial x} [1 - e^{-(t/t_d)(1 + \cos Kx)}], \quad (13)$$

$$t_d = (\gamma \epsilon_0 \hbar \omega) / (4\pi e \mu \kappa I_0).$$

Мы видим, таким образом, что записанная периодическая решетка содержит много пространственных гармоник. Для определения эффективности диффузии и сдвига фазы необходимо найти из (13) величину первой Фурье-компоненты E_1 , поскольку на остальных гармониках поля в силу условий Брэгга не происходит дифракции света. Записывая первую Фурье-гармонику в виде $E_1 e^{iKx} + \text{К. С.}$, найдем из (13)

$$E_1 = -E_0 J_1(t/t_d) e^{-t/t_d} + \frac{iDK}{\mu} [1 - e^{-t/t_d} J_0(t/t_d) - e^{-t/t_d} J_1(t/t_d)], \quad (14)$$

$$t/t_d = \tau.$$

Здесь $J_0(\tau)$, $J_1(\tau)$ — модифицированные функции Бесселя. Сдвиг фазы решетки определяется из очевидного равенства

$$\operatorname{tg} \varphi = (\operatorname{Im} E_1(\tau)) / (\operatorname{Re} E_1(\tau)).$$

Находя далее амплитуду модуляции показателя преломления $\Delta n = \frac{1}{2} n_0^3 r_{13} |E_1|$ и определяя с ее помощью зависимость $\eta(t)$, приходим к формулам (4) — (7). В случае чистой диффузии в этих формулах следует положить $E_0 = 0$. При этом, очевидно, $\varphi = \pi/2$, а $\eta(t)$ подчиняется соотношению (4).

ЛИТЕРАТУРА

1. F. S. Chen. Optically induced change of refractive indices in LiNbO_3 and LiTaO_3 .— "J. Appl. Phys.", 1969, vol. 40, p. 3389—3396.
2. В. И. Белиничер, И. Ф. Канаев, В. К. Малиновский, Б. И. Стурман. Исследование эффекта оптического повреждения в кристаллах LiNbO_3 .— «ФТГ», 1976, № 8, с. 2256.
3. М. Б. Ройтенберг, В. К. Новик, Н. Д. Гаврилова. Особенности пьезоэлектрического эффекта и электропроводности в монокристаллах LiNbO_3 в области 20—250°С.— «Кристаллография», 1969, т. 14, с. 938.
4. W. D. Johnston. Optical index damage in LiNbO_3 and other pyroelectric insulators.— "J. Appl. Phys.", 1970, vol. 41, p. 3279—3285.
5. А. И. Ангерт, В. А. Пашков, И. М. Соловьева. Оптически наведенная неоднородность показателя преломления в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3 .— «ЖЭТФ», 1972, т. 62, вып. 5, с. 1666.
6. A. M. Glass, D. von der Linde, T. J. Negran. High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO_3 .— "Appl. Phys. Lett.", 1974, vol. 25, p. 233—235.
7. J. J. Amodei. Analysis of transport processes during holographic recording in insulators.— "RCA Rev.", 1971, vol. 32, p. 185—198.

Поступила в редакцию 27 февраля 1976 г.

УДК 772.99 : 681.14

И. Б. БАРКАН, Е. В. ПЕСТРЯКОВ, М. В. ЭНТИН

(Новосибирск)

КИНЕТИКА ИМПУЛЬСНОЙ ГОЛОГРАФИЧЕСКОЙ ЗАПИСИ В ЭЛЕКТРООПТИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ

Голографическую запись в электрооптических кристаллах, содержащих глубокие ловушки, LiNbO_3 , LiTaO_3 и других можно объяснить модуляцией коэффициента преломления полем пространственного заряда [1]. Возникновение пространственно-неоднородного заряда связано