

15. Terauchi H., Takenaka H., Matsumori N. and Sawada A.—J. Phys. Soc. Jap., 1978, vol. 44, p. 1751.
16. Fox D. L., Scott J. F. and Bridenbaugh P. M.—Solid State Commun., 1976, vol. 18, p. 111.
17. Scott J. F.—Ferroelectrics, 1978, vol. 20, p. 69.
18. Sandercock I. R., Palmer S. B., Elliot R. J. a. o.—J. Phys. C: Solid State Phys., 1972, vol. 5, p. 3126.
19. Rehwald W.—Adv. Phys., 1973, vol. 22, p. 721.
25. Harley R. T.—J. Phys. C: Solid State Phys., 1977, vol. 10, p. L205.

*Поступила в редакцию
4 апреля 1979 г.*

УДК 537.226 : 535.21

И. Ф. КАНАЕВ, В. К. МАЛИНОВСКИЙ
(Новосибирск)

ДИНАМИКА ОПТИЧЕСКОГО ПОВРЕЖДЕНИЯ В КРИСТАЛЛАХ LiNbO_3

I. Введение. Исследование изменения под действием облучения светом показателя преломления кристаллов LiNbO_3 привело к открытию фотогальванических токов в сегнетоэлектрических материалах. Было обнаружено, что при равномерном освещении кристалла, замкнутого на измерительное сопротивление, в цепи возникает стационарный ток, пропорциональный интенсивности:

$$j_{ст} = k\kappa I, \quad (1)$$

где k — коэффициент пропорциональности, κ — коэффициент поглощения, I — плотность облучения. Если облучается только часть кристалла, то возникает переходный ток:

$$j = j_{ст} - (\sigma_T + \sigma_\Phi)E, \quad (2)$$

что приводит в установившемся режиме ($j = 0$) к появлению в освещенной области полей

$$E_{ст} = j_{ст}/(\sigma_T + \sigma_\Phi), \quad (3)$$

здесь σ_T и σ_Φ — темновая и фотопроводимость. Из (1)–(3) следует, что если $\sigma_\Phi > \sigma_T$ и наряду с выполнением (1) выполняется условие

$$\sigma_\Phi = \beta\kappa I, \quad (4)$$

то $E_{ст}$ не зависит от интенсивности.

Впервые возможность генерации электрического поля через сторонние токи предположил Гласс [1], базируясь на прямых измерениях электрических полей, возникающих в незакороченном кристалле. В настоящее время известно довольно много экспериментальных данных, подтверждающих мысль о существенном вкладе фотогальванического (ФГ) механизма в изменение показателя преломления, величина же вклада до сих

пор остается дискуссионной. Это объясняется, по-видимому, как богатым набором эффектов, способных участвовать в изменении n под действием света, так и экспериментальными трудностями. Прямые измерения полей удается провести только до напряженностей 10—15 кВ/см, тогда как в соответствии с зафиксированными величинами Δn поля должны достигать $\sim 10^5$ В/см и более. Ограничения связаны с пробоями по поверхности, поэтому соответствие экспериментально полученных величин $j_{ст}$, $\sigma_{ф}$ и $E_{ст}$ соотношению (3) наблюдается только для образцов с большой фотопроводимостью [1], где величины полей $E_{ст}$ не превышают нескольких киловольт на сантиметр, а величина $\beta \sim 10^{-12}$. Данные для образцов с меньшей фотопроводимостью практически отсутствуют, и большая их часть противоречит феноменологии (1)—(3). Причина этих противоречий не установлена.

Наиболее противоречивые результаты получаются при исследовании чистых кристаллов [2]. Зависимость Δn от интенсивности не согласуется с феноменологией фотогальванического эффекта, а предполагаемое для объяснения соотношение между темновой и фотопроводимостью ($\sigma_t > \sigma_{ф}$) [3] не подтверждается в экспериментах. В ряде работ [4, 5] отмечается, что и в легированных кристаллах постоянство $E_{ст}$ характерно только для малых ($I \leq 1$ мВт/см²) интенсивностей облучения.

В настоящее время в литературе практически отсутствуют сведения о динамике процесса записи в кристаллах с $\Delta n \geq 10^{-4}$. В этих кристаллах наблюдаются эффекты сильного рассеяния при облучении их когерентным светом. Из имеющихся в литературе данных в общем понятен основной механизм рассеяния, связанный с записью случайных голографических решеток, но детальная картина его появления остается невыясненной. Мы полагаем, что большая часть противоречий разрешилась бы, если бы удалось однозначно показать, что наблюдаемое изменение Δn целиком обусловлено электрическим полем, а величина этого поля количественно согласуется с феноменологией (1)—(4).

В п. II приводятся сведения, позволяющие сделать заключение о полевом характере записи в исследуемых кристаллах LiNbO₃. В п. III приведены подробные экспериментальные данные о динамике записи и влияния на нее процессов рассеяния. Найдены условия «просветления» образцов при облучении их когерентным светом. В пп. IV, V приводятся данные о зависимости запирающих полей от интенсивности и сделан вывод о том, что эффект оптического повреждения в легированных кристаллах целиком описывается феноменологией (1)—(4).

II. Экспериментальное разделение полевой и неполевой частей Δn . В экспериментах по изучению наведенного изменения n мы использовали интерферометр и исследовали компоненту $\Delta n_e(x, z)$. Если в индуцированном Δn_e имеется полевая $\Delta n_e(E)$ и неполевая $\Delta n_e(A)$ компоненты, то их величины можно определить с помощью исследования распределения Δn_e вблизи границ перехода кристалл — внешняя среда. Известно, что в кристаллах ниобата лития Δn_e компонента зависит только от поля E_z , где E_z — проекция электрического поля на оптическую ось, т. е.

$$\Delta n_e(E) = -\frac{1}{2} n_e^3 r_{33} E_z = -\frac{1}{2} n_e^3 r_{33} E_z.$$

Если кристалл помещен в проводящую среду, то $E_z(x, z)$ -компонента будет равна нулю вблизи его поверхностей, параллельных оси C , в соответствии с условием непрерывности тангенциальной составляющей поля при переходе через границу двух сред. Это означает, что неполевому механизму записи соответствует только та часть измеренной величины $\Delta n_e(x, z)$, которая отлична от нуля вблизи соответствующих границ кристалла. Разделение $\Delta n_e(E)$ и $\Delta n_e(A)$ частей можно сделать и в случае, когда кристалл находится в воздухе. Действительно, если к облученному образцу в процессе экспозиции (или после нее) приблизить

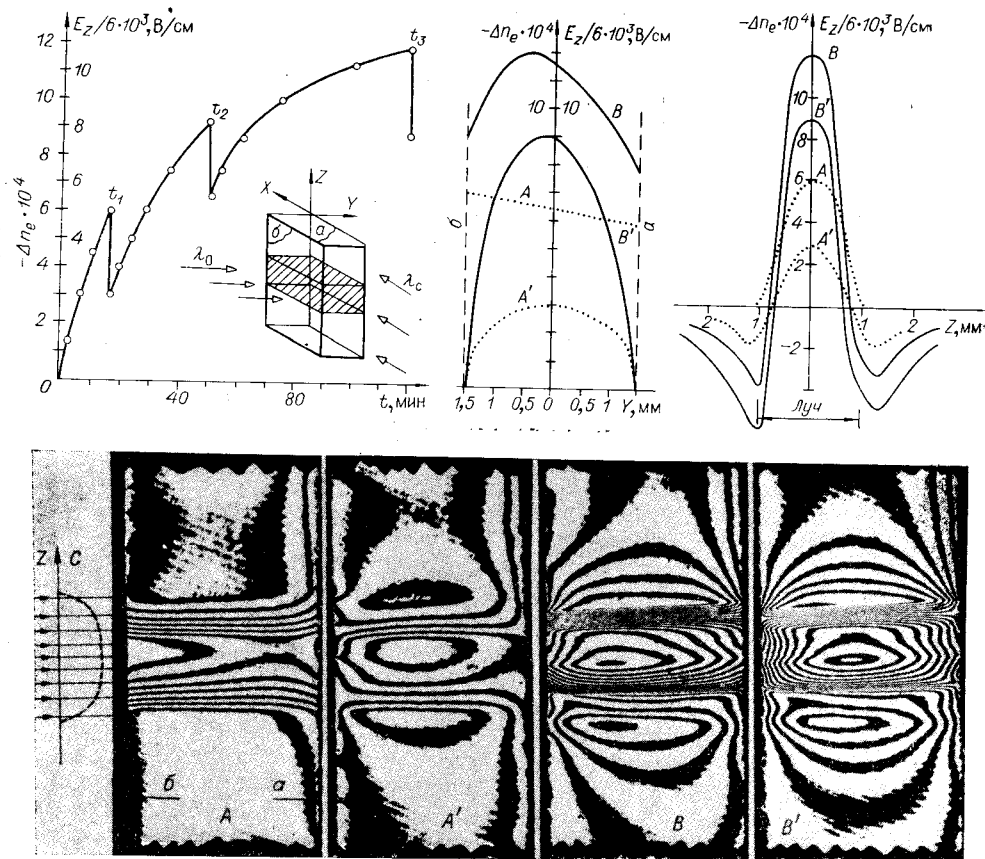


Рис. 1. Динамика изменения n в легированном Fe $\approx 0,01$ вес. % образце: на левом графике даны значения Δn_e для центра освещенной области; на правых — обработка интерферограмм A , A' и B , B' ; a , b — грани образца \perp оси Y ; λ_0 — облучающий и λ_c — считающий пучки; слева от интерферограмм штриховая линия соответствует распределению интенсивности в пучке λ_0 . $I=10^{-2}$ Вт/см 2 .

проводник (металлическую фольгу), то распределение Δn_e станет таким же, как и в случае с проводящей внешней средой.

На рис. 1 приведены данные эксперимента по облучению изолированного образца. Интерферограммы A и B отражают состояние показателя преломления в моменты времени t_1 и t_3 . Здесь каждая полоса проходит по точкам с одинаковым показателем преломления, и переход от одной черной (белой) полосы к другой соответствует изменению показателя преломления на величину, равную 10^{-4} . Одинаковый номер полосы относительно центра освещенной области соответствует также точкам с одинаковым n .

На интерферограмме A видно, что полосы, перпендикулярные оси Z , прерываются на границе кристалла. Это означает, что $E_z(x, z)$ постоянна по всей освещенной области, в том числе и на границе. Интерферограммы A' и B' отражают состояние образцов в те же моменты времени t_1 и t_3 после кратковременного контакта металлической фольги с плоскостью a и b образца без прерывания облучения. Видно, что большая часть полос замкнута и вдоль узкой приграничной области плоскостей a и b практически нет градиента n_e .

Если кристалл остается изолированным во время облучения, то величина Δn_e также скачкообразно изменяется. Изменения идентичны переходам типа $A \rightarrow A'$ и $B \rightarrow B'$, только чаще всего имеют локальный

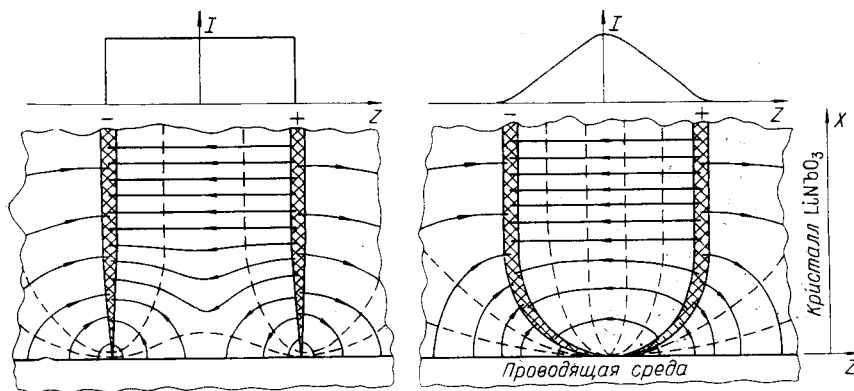


Рис. 2. Картина распределения электрических полей: стрелками показаны линии напряженности электрического поля, штриховые линии — эквипотенциальные поверхности; ширина заштрихованной области соответствует плотности заряда. Распределение Δn_e , приведенное на рис. 4, согласуется с левой картиной, Δn_e на рис. 3 — с правой.

характер. Роль металлической фольги в данном случае играют поверхностные пробои.

Динамика процесса записи отличается от вышеописанной, если образец помещен в проводящую среду. В этом случае не происходит скачкообразных изменений показателя преломления, и в любой момент облучения величина $\Delta n_e(x, z)$ вблизи границ, параллельных оси Z , остается равной нулю. Последний факт подтверждается данными рис. 3—6. Интерферограммы получены на образцах, находящихся в воде; схема облучения и считывания аналогична приведенной на рис. 1.

Эксперименты с изолированными образцами и с образцами, помещенными в проводящую жидкость, показывают, что с точностью до разрешающей способности аппаратуры ($\Delta n_e = 3 \cdot 10^{-5}$) как в легированных образцах, содержащих примесь Fe $\leq 0,05$ вес.%, так и в номинально чистых индуцированное светом изменение показателя преломления Δn_e вызвано электрическим полем. Это подтверждается равенством нулю Δn_e вблизи границы раздела образец — проводящая среда, а также быстрой перестройкой индуцированного светом изменения показателя преломления при замене внешней непроводящей среды на проводящую.

Максимальные наблюдаемые нами поля в легированных образцах — 110 кВ/см, $\Delta n_e = 3 \cdot 10^{-3}$, разрешающая способность — 1%. Минимальное насыщенное поле в номинально чистом образце составляет 20 кВ/см, разрешающая способность $\sim 10\%$.

Картины распределения электрических полей вблизи границы при разных профилях интенсивности приведены на рис. 2. Данные этого рисунка являются результатом обработки интерферограмм кристаллов, засвеченных узкой полосой света. Здесь не учтены эффекты рассеяния и влияние границ раздела кристалл — проводящая среда в направлении оси Y (имеется в виду, что кристалл в направлении Y бесконечен).

III. Процессы рассеяния и их влияние на динамику записи. Рассеяние света, возникающее при облучении кристаллов когерентными пучками, зависит от весьма многих, на первый взгляд, не связанных между собой условий проведения эксперимента. Сюда включаются зависимости от поляризации и профиля распределения интенсивности, от геометрии освещенной области кристалла, от степени легирования и т. д. Из большой серии экспериментов по изучению эффектов рассеяния и динамики изменения n мы можем выделить несколько основных фактов.

1. При длительном облучении кристалл становится непрозрачным, и падающий на него свет рассеивается. Это состояние стабильно. Тол-

щина образцов, в которых достигается полное рассеяние, $\geq 0,4$ мм. Рассеяние света происходит по двум причинам:

а) за счет нерегулярного распределения Δn , соответствующего записи хаотически распределенных неоднородностей в пучке;

б) за счет периодического изменения Δn , соответствующего записи локальных голограмм.

Иллюстрация перечисленных особенностей приведена на рис. 3—5.

2. В некоторых образцах можно найти условия, в которых после стадии рассеяния образец «просветляется». «Просветления» удается достичь только при ограниченных вдоль оси C размерах экспонирующего пучка. Ограничение на размер «просветляющего» пучка имеется как снизу, так и сверху. В частности, для легированных $Fe \geq 0,01$ вес. % образцов верхняя граница размера пучка ~ 1 мм, а нижняя зависит от

3. При облучении чистых образцов наблюдается тенденция к несимметричному в $\pm C$ -направлениях распределению Δn (см. рис. 7, 8). Это проявляется также в отклонении прошедшего света в $+C$ -направлении. Внутри образца при этом свет проходит по криволинейной траектории. Отмеченные эффекты проявляются сильнее при увеличении размера кристалла в направлении освещения ($\perp C$) и при уменьшении размера луча вдоль оси C .

4. Размер области равномерного распределения Δn совпадает с размером экспонирующего пучка в направлении $\perp C$ и уменьшен в направлении $\parallel C$. Это характерно для всех образцов и наглядно проявляется при облучении круглым пучком (см. рис. 7).

5. При облучении некогерентным светом наблюдается только эффект, описанный в п. 4.

Перечисленные результаты можно объяснить исходя из представлений о фотогальваническом механизме наведения оптических неоднородностей. Важную роль играет различие в начальном распределении интенсивности по сечению когерентного и некогерентного пучков. Это различие заключается в мелкомасштабной неравномерности интенсивности когерентного пучка, вызванной интерференцией (спекл-картина). При облучении всего объема образца неравномерным пучком показатель преломления, согласно (2), будет зависеть от распределения интенсивности, поскольку будет постоянно течь ток, обусловленный либо пробоями по поверхности, либо проводимостью внешней цепи (если образец замкнут). Неоднородность интенсивности в пучке усилится внутри образца за счет рассеяния на индуцированных неоднородностях n . Для оценки минимальной толщины кристалла d_{min} , на котором произойдет рассеяние в пределах угла $\lesssim \Theta$, можно воспользоваться соотношением $d_{min} \geq \lambda \cdot \cos \Theta / 2\Delta n$. Из наших экспериментов следует, что приведенная оценка довольно хорошо согласуется с экспериментальными данными.

Если облучается только часть кристалла, то в освещенном объеме, согласно (3), возникает электрическое поле, величина которого в стационарном состоянии не зависит от интенсивности. Поэтому индуцируемые в начальный момент экспозиции неоднородности исчезают при выходе на стационар. Стационарное состояние (3) с равным нулю полным током описывает только области, удаленные от границы перехода кристалл-внешняя среда. Вблизи границы будет течь постоянный фотогальванический ток, замыкающийся через поверхность. (Если образец не в проводящей среде, то замыкание происходит через поверхностные пробои.) Размер рассеивающей области в направлении луча меньше или

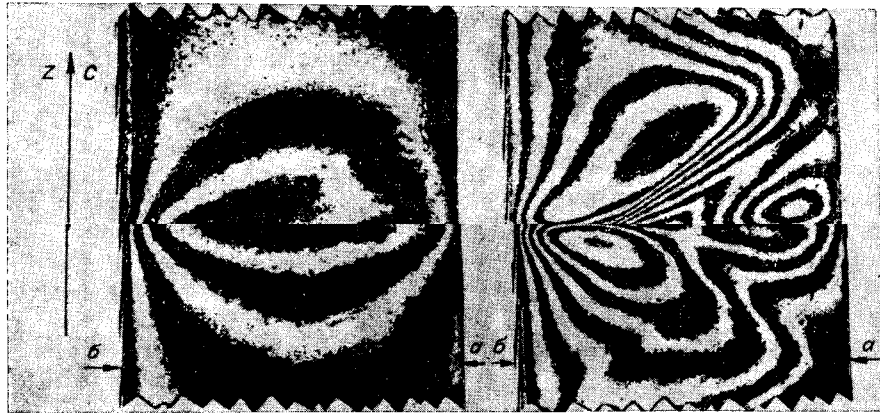


Рис. 3. Распределение Δn_e в моменты $t_1 = 2$ мин и $t_2 = 10$ мин при облучении $\lambda_0 = 0,5$ мкм, $I = 0,75$ Вт/см².

На правой интерферограмме видны следы сформированных дифракцией пучков, распространяющихся в разных направлениях.

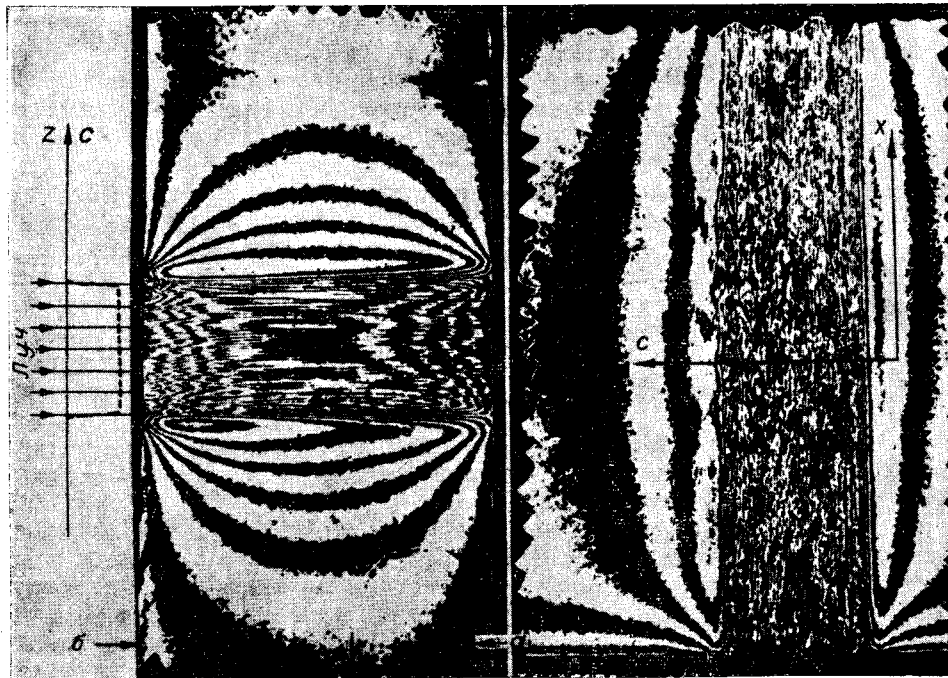


Рис. 4. Распределение Δn_e после 2-минутного облучения, $I = 1,5$ Вт/см².

Здесь хорошо видна нерегулярная часть Δn_e . Правая интерферограмма получена при считывании вдоль облучающего пучка. В этом направлении интерферограммы кристаллов, приведенных на рис. 3 и 5, идентичны.

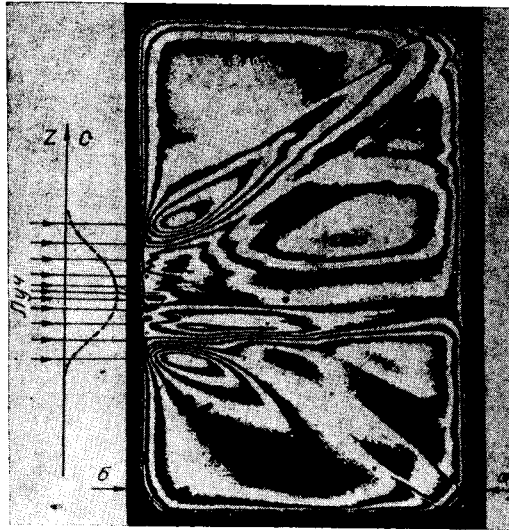


Рис. 5. Стационарная картина распределения Δn при облучении «непросветляющим» пучком.

Такое состояние характерно при длительном освещении и для случаев, приведенных на рис. 3 и 4; $I = 10 \text{ Вт/см}^2$, $t = 3 \text{ мин}$.

и заданной ширины пучка. Как следует из экспериментов, $d_{\text{эф}} \approx d_n/3$, где d_n — ширина (или диаметр) пучка вдоль C для равномерного и гауссовского профилей интенсивности. «Просветления» происходить не будет, если в механизме записи проявляется зависимость Δn от I , что и наблюдается в чистых кристаллах. Направленное отклонение траектории распространения света в таких образцах можно объяснить записью локальных голографических решеток, в которых распределение Δn сдвинуто относительно распределения интенсивности наполовину длины решетки. Это, как известно, приводит к перекачке энергии в пучки, волновые векторы которых имеют положительную составляющую на оптическую ось C .

Возникновение рассеяния, описанное выше, связано в основном с начальным неравномерным распределением интенсивности и с когерентностью пучка. Имеется еще одна возможность появления рассеяния: если Δn не зависит от интенсивности, то заряды должны сосредоточиться в бесконечно узком слое у границы перехода свет — тень. На практике бесконечно узкий слой не реализуется, поскольку свет из областей с большими градиентами n должен рассеяться. Угол отклонения света при наличии градиента n между двумя точками, лежащими на расстоянии d , можно оценить из соотношения $\Theta = \arctg l \Delta n/d$, здесь l — длина кристалла в направлении пучка.

Рассмотрим конкретный пример: $l = 3 \text{ мм}$, $\Delta n = 10^{-3}$. При таких условиях свет отклоняется на углы $\Theta \geq 5^\circ$ на толщине $d \leq 0,1 \text{ мм}$.

Такой линзовый эффект ограничивает на практике размеры «просветляющего» пучка снизу. Для приведенных выше параметров l и Δn диаметр пучка $\leq 2d = 0,2 \text{ мм}$ не вызывает «просветления». Это же явление обуславливает несоответствие области равномерного распределения Δn размеру пучка (см. п. 4), поскольку максимальный градиент имеет место в направлении оси C и мал в направлении $\perp C$ в областях перехода свет — тень.

Рассеяние, как мы видим, определяет как динамику процесса изменения n , так и стационарное состояние. Характерный пример показан на рис. 6. Видно, что в начальный момент экспозиции n меняется одинаково по всей длине пучка. Этот факт позволяет пренебречь умень-

порядка размера пучка, а ее форма в общем случае зависит от распределения интенсивности в пучке. Например, из картин распределения электрических полей, приведенных на рис. 2, можно предположить, что в соответствии с вышеизложенными представлениями рассеяние при «равномерном» распределении интенсивности будет сильнее в центре пучка, а в случае гауссовского распределения оно смещено к краю. В экспериментах это предположение хорошо подтверждается.

Уменьшение размеров пучка вдоль C уменьшает и толщину рассеивающего слоя. Чтобы достичь полного просветления, необходимо удовлетворять условию $d_{\text{эф}} \leq d_{\text{мин}}$. Здесь $d_{\text{эф}}$ — эффективная толщина рассеивающего слоя для заданного распределения интенсивности

пением интенсивности вдоль луча, вызванного поглощением. С увеличением времени облучения градиент n вдоль луча увеличивается, что должно означать падение интенсивности в направлении выхода пучка. Величина Δn крайне мала, чтобы объяснить этот факт образованием отрицательной линзы. Наблюдение за пучком, прошедшим образец, показывает, что изменение вызвано рассеянием. На этом же рисунке можно увидеть, как существенно различаются характерные времена выхода на стационар в областях входа и выхода пучка.

IV. Зависимость насыщенного значения $\Delta n_{ст}$ от интенсивности. Поскольку Δn вызвано электрическим полем, исследование зависимости $\Delta n_{ст} = f(I)$ соответствует исследованию запирающих полей

$$E_{ст} = j_{ст}/\sigma, \quad (*)$$

где $\sigma = \sigma_{\phi} + \sigma_{т}$. Из (*) видно, что, если сторонний ток и фотопроводимость пропорциональны интенсивности, $E_{ст}$ является константой при $\sigma_{\phi} \gg \sigma_{т}$. В случае если $E_{ст}$ зависит от интенсивности, то необходимо исследование функциональных зависимостей $j_{ст} = \varphi(I)$ и $\sigma = \psi(I)$.

Легированные образцы. Оказывается, что именно в легированных образцах выполняется условие постоянства запирающего поля в большом диапазоне интенсивностей. В исследованных нами легированных образцах, содержащих примеси Fe от 0,01 до 0,05 вес. %, величина $\Delta n_{ст}$ в области освещения была постоянной при интенсивностях облучения от 10^{-2} до 400 Вт/см^2 .

Экспериментальные данные, отражающие зависимость стационарной величины Δn_e от условий теплоотвода и пространственное распределение Δn_e , приведены на рис. 7. Освещение проводилось пучками: $\Phi = 0,3-6 \text{ мм}$, $\lambda = 0,51 \text{ мкм}$. Кривая A получена, когда образец ($3 \times 6 \times 9 \text{ мм}$) помещен в кювету с водой. Кривая B снята на том же образце, размещенном на стеклянной подложке. Разница в поведении кривых обусловлена изменением температуры кристалла в условиях плохого теплоотвода. При увеличении коэффициента поглощения роль нагрева возрастает (для кривой B $k = 0,3 \text{ см}^{-1}$, C $k = 2 \text{ см}^{-1}$). Температурные градиенты столь существенны, что, начиная с некоторых интенсивностей, они определяют и знак Δn .

Характерное пространственное распределение Δn в стационарном состоянии приведено на интерферограммах рис. 7. Они отражают одно и то же состояние образца, но для нижней интерферограммы угол между опорным и предметным лучами интерферометра не равен нулю. Стационарное состояние $\Delta n_{ст}$ не зависит от распределения интенсивности в пучке (см. рис. 7).

Отметим существенное отклонение распределения полей в теневых областях образца от распределения, которое должно быть в случае, когда заряды оседают в очень узкой области перехода свет — тень. Отклонение заключается в неравенстве полей при переходе по оси C границы свет — тень и в характере распределения поля в направлении, перпендикулярном оси C на расстоянии меньше диаметра пучка. Этот факт мы отмечаем, чтобы еще раз подчеркнуть роль граничных условий.

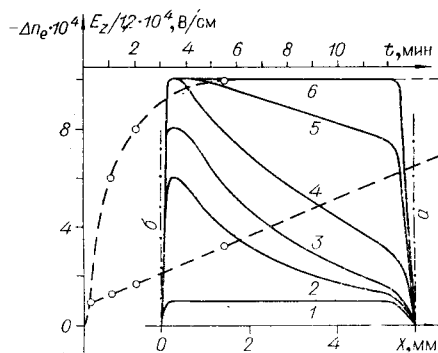


Рис. 6. Влияние процессов рассеяния на пространственные и временные характеристики Δn .

Схема облучения и считывания аналогична показанной на рис. 1. Штриховые кривые отражают изменение Δn во времени; сплошные соответствуют распределению Δn вдоль экспонирующего луча; светлые кружки на штриховой кривой отмечают моменты, к которым относятся кривые 1—4, кривые 5 и 6 получены на 16-й и 40-й мин.

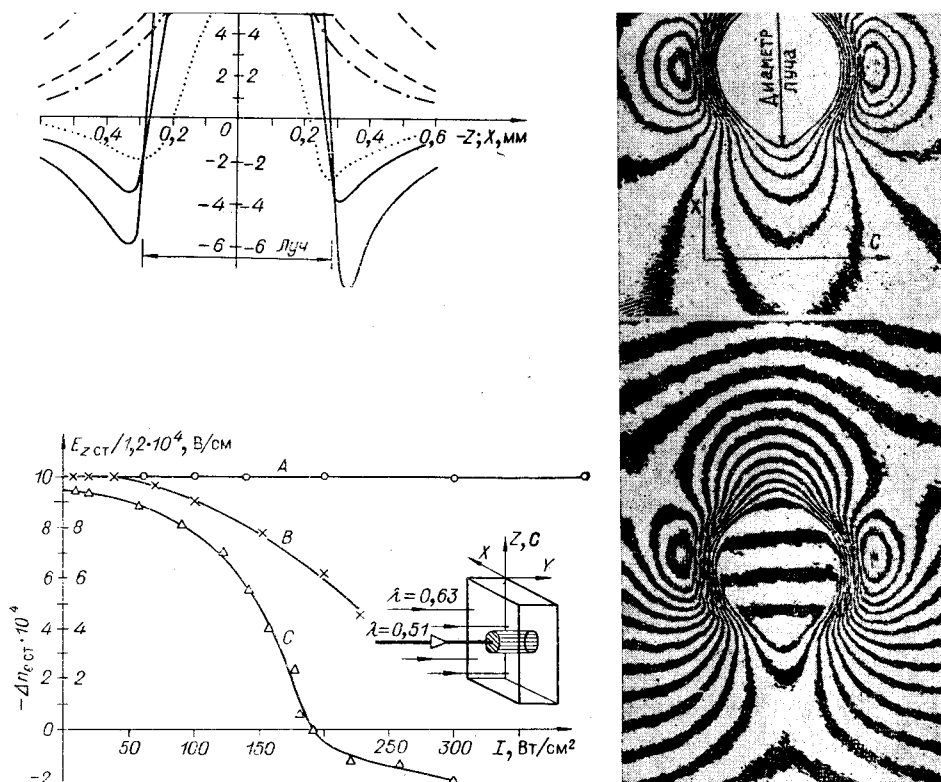


Рис. 7. Функциональная зависимость $\Delta n = f_I$ для легированных $\text{Fe} \geq 0,01$ образцов (A, B, C):

a, б — пространственное распределение Δn_e для равномерного и гауссовского профиля интенсивности вдали от стационара; в — стационарное состояние распределения $\Delta n_{ст}$ для обоих профилей интенсивности; штриховая и штрихпунктирная линии — распределение Δn_e в направлении оси Y; сплошная линия и пунктирная — распределение Δn_e в направлении оптической оси. Интерферограммы соответствуют стационарному состоянию (кривая в).

В образцах с содержанием примеси $\text{Fe} \geq 0,01$ вес. % не обнаруживается корреляции величин полей $E_{ст}$ со степенью легирования. Абсолютная величина запирающих полей разная (60—110 кВ/см). Как следует из прямых измерений фотопроводимости и сторонних токов, этот разброс связан с изменением коэффициента фотопроводимости β .

Чистые образцы. В чистых кристаллах ($\text{Fe} < 0,005$ вес. %) величина запирающего поля зависит от интенсивности. На рис. 8 представлены зависимости $\Delta n_{ст}$ для двух образцов. Интересна частичная взаимобратимость, которая заключается в возможности обратимого движения по кривой $\Delta n_{ст} = f(I)$ при изменении интенсивности. Такая взаимобратимость наблюдается, например, для кривой A в области интенсивностей ≥ 50 Вт/см². Повторное облучение интенсивностями ≤ 10 Вт/см² точки, достигшей насыщенного равновесия при облучении 100 Вт/см², приводит к частичному уменьшению равновесной для интенсивностей 100 Вт/см² величины $\Delta n_{ст}$. В экспериментах нам удавалось интенсивностями до 10 Вт/см² «стереть» запись на 20—30%. Из факта частичной обратимо-

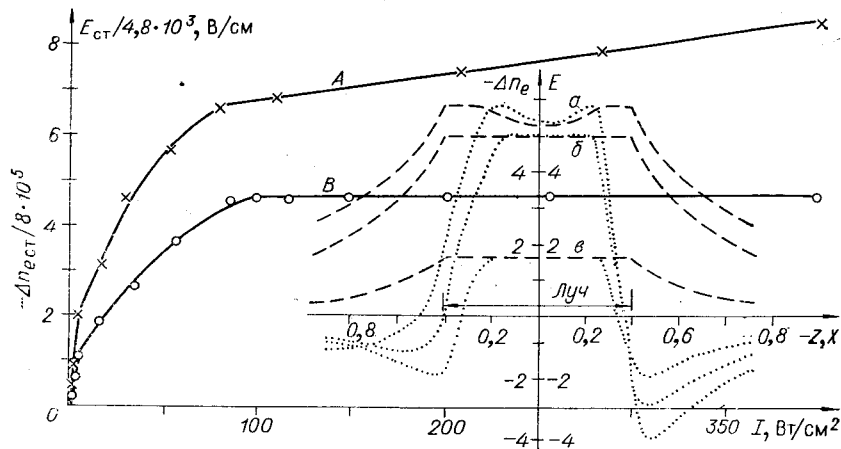


Рис. 8. Функциональная зависимость $\Delta n_{ст} = f_I$ для нелегированных образцов ($Fe \leq 0,05$ вес. %).

Коэффициент поглощения для кривой В равен $1,3 \cdot 10^{-2}$, для А— $5 \cdot 10^{-2}$. Схема облучения и считывания аналогична показанной на рис. 7. Штриховая линия и пунктирная — пространственное распределение Δn_e в направлениях осей X и Z соответственно. Плотность облучения 50 Вт/см^2 , распределение интенсивности равномерное. Время облучения для кривых α, β, ε равно 20, 160 и 400 с соответственно. Провал в центре обусловлен уменьшением интенсивности за счет рассеяния.

сти следует, что полученные зависимости определяются нелинейностью величин $j_{ст} = \varphi(I)$ и $\sigma = \psi(I)$.

Темновая проводимость. В исследованных нами как номинально чистых, и легированных до 0,05 вес. % образцах характерное время релаксации Δn колеблется от нескольких дней до нескольких месяцев. Корреляции с легированием в этой области практически не наблюдается. Полученные времена релаксации соответствуют темновой проводимости $4 \cdot 10^{-17} - 5 \cdot 10^{-19} (\text{Ом} \cdot \text{см})^{-1}$. Величина темновой проводимости, полученная в прямых измерениях, меняется в диапазоне от 10^{-15} до $2 \cdot 10^{-17} (\text{Ом} \cdot \text{см})^{-1}$ соответственно.

Зависимость $\Delta n_{ст}$ в области малых интенсивностей ($1-100 \text{ Вт/см}^2$) в чистых кристаллах не может, по-видимому, объясняться темновой проводимостью. Это можно подтвердить экспериментами во внешних полях. Если приложить поле перпендикулярно оптической оси, а экспонирующий луч направить вдоль оси, то запись будет обусловлена внешним полем, поскольку в данной геометрии освещения эффект записи без приложенного поля отсутствует. В случае большой темновой проводимости мы должны получить зависимость от интенсивности, аналогичную получаемой за счет фотогальванического эффекта. Действительно, величина полей в случае фотогальванического эффекта определится из уравнений

$$\sigma_T E_T = j_{ст} - E_0(\sigma_\Phi + \sigma_T), \quad (5)$$

$$0 = E_T l_T + E_0 l_0,$$

а в случае приложенного внешнего поля $E = U/l$ — из уравнений

$$\sigma_T E_T = E_0(\sigma_\Phi + \sigma_T), \quad (6)$$

$$U = E_T l_T + E_0 l_0.$$

Величина n изменяется как в темновой, так и в освещенной области пропорционально соответствующим полям, поэтому $\Delta n_{ст}$ определится равенством $\Delta n_{ст} = A(E_0 + E_T)$. Здесь E_0 и E_T — поле в освещенной и неос-

вещенной областях, а l_0 и l_r — их размеры вдоль направления поля, A — коэффициент пропорциональности для электрооптического эффекта.

Если образец освещается узкой полосой света и размер $l_r \gg l_0$ (т. е. размер неосвещенной области l_r сравним с длиной образца l), то для случаев (5) и (6) соответственно получим

$$\Delta n_{ст} = A_1 j_{ст} / (\sigma_{\Phi} + \sigma_r); \quad \Delta n_{ст} = A_2 E \sigma_{\Phi} / (\sigma_{\Phi} + \sigma_r).$$

Отсюда видно, что, проводя эксперимент на одном кристалле без приложенного поля и с внешним полем, мы должны получить совершенно одинаковую зависимость $\Delta n_{ст}$ от интенсивности.

Из наших же экспериментов следует, что величина $\Delta n_{ст}$ в случае (6) зависит не от интенсивности, а только от величины приложенного поля.

Возможно, что зафиксированные в прямых измерениях величины σ_r отражают проводимость поверхностных слоев образца. Частично это подтверждается экспериментами с отожженными образцами. В серии образцов, отожженных в вакууме при разных температурах, имелись образцы с темновой проводимостью $\sigma_r = 10^{-12} (\text{Ом} \cdot \text{см})^{-1}$. Время же релаксации записанного пятна оставалось таким же, как и в контрольных образцах. Интерферометрические исследования показали, что в этих образцах распределение Δn_e вблизи поверхности такое, как если бы образец был помещен в проводящую среду.

V. Сторонние токи. Фотогальванический ток обнаруживает нелинейную зависимость от содержания примеси железа. Эта нелинейность коррелирует с коэффициентом пропорциональности $k (j_{ст} = k \kappa I)$. На рис. 9 представлена зависимость k от содержания примеси для образцов с одинаковым коэффициентом фотопроводимости $\beta (\sigma_{\Phi} = \beta \kappa I)$. Отношение $E_{ст} = k/\beta = \text{const}$ выполняется при подстановке экспериментально полученных величин k , β и $E_{ст}$ в образцы, легированные $\text{Fe} \geq 0,01$ вес.%. Для номинально чистых кристаллов ($\text{Fe} \leq 0,003$) это отношение выполняется при насыщенном значении поля. Под насыщенной величиной поля понимается его величина в области независимости от интенсивности. Промежуточная область имеет некоторую экспериментальную неопределенность, связанную с двумя причинами. Первая состоит в том, что насыщенной величины поля мы в экспериментах не достигаем. Этому мешает сильное стационарное рассеяние. Вторая — в том, что значения величины k , полученные в двух разных способах измерения, сильно различаются. Оба способа относятся к измерению зависимости стороннего тока от интенсивности. В первом случае облучается один участок кри-

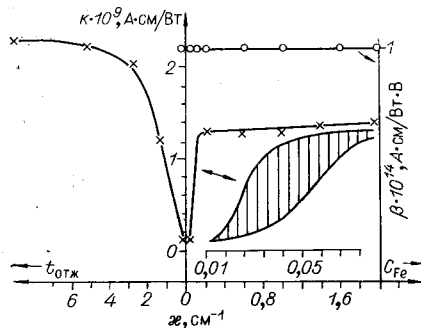


Рис. 9. Зависимость коэффициента пропорциональности $k (j_{ст} = k \kappa I)$ от поглощения.

Вправо отложен коэффициент поглощения κ , определяемый примесью железа, влево β определяется временем отжига в вакууме номинально чистого образца. Увеличенный масштаб для κ относится к заштрихованной области.

сталла, и интенсивность при этом меняется калиброванными фильмами (в этих измерениях свет направлен вдоль оптической оси). При таком способе измерения все образцы обнаруживают линейную зависимость тока $j_{ст}$ от интенсивности (от 0 до 500 Вт/см^2), т. е. коэффициент k не зависит от интенсивности. Несколько другой результат получается, когда плотность облучения изменяется путем уменьшения сечения пучка без изменения мощности W . При таком способе изменения плотности мы должны получить постоянный ток в измерительной цепи, если зависимость стороннего тока от интенсивности линейна: $i_{взм} = k \kappa W$. Для большего количества образцов, у которых имеется зависимость заширающего поля

от интенсивности, обнаруживается существенное увеличение стороннего тока при уменьшении диаметра светового пучка. При этом увеличивается коэффициент k до величины, сравнимой с его значением в легированных кристаллах. Отметим, что сторонний ток в легированных кристаллах при таком способе изменения плотности с большой точностью остается постоянным, слабо меняется в номинально чистых образцах и существенно меняется в образцах, «переходных» между номинально чистыми и легированными. На рис. 9 кривые, ограничивающие заштрихованную область, указывают пределы изменения величины k при изменении диаметра освещенной области с 2 до 0,1 мм. Напомним, что и в данных кристаллах k не зависит от интенсивности, если размеры засвеченной области не меняются.

Такую зависимость можно, по-видимому, объяснить наличием множества областей конечного размера (кластеров) с разной степенью легирования. Действительно, при размерах легированных областей меньше диаметра пучка освещенные части этих областей можно рассматривать как последовательную цепь легированных кристаллов, соединенных между собой освещенными областями «чистого кристалла» (предполагается, что «чистая» область имеет фотопроводимость и в ней практически отсутствует фотогальванический ток). Тогда в измерительной печи в стационаре будет течь ток $i_{изм} = j_{ст} \sigma_{ч} / (\sigma_{ч} + \sigma_{л})$. Здесь $\sigma_{ч}$, $\sigma_{л}$ — проводимости чистой и легированной областей.

Если $\sigma_{ч}$ и $\sigma_{л}$ зависят линейно от интенсивности (что вполне вероятно), то в измерительной печи будет течь ток, пропорциональный интенсивности, но отражающий только линейный характер зависимости $j_{ст} = f(I)$, а не его абсолютную величину. При расширении пучка легированные области кристалла скажутся в окружении проводящей среды, и часть тока будет замыкаться по ней, не проходя через измерительное сопротивление, что приведет к уменьшению измеряемого тока и соответственно к уменьшению коэффициента k .

Естественно предположить, что в номинально чистых кристаллах, не обнаруживающих вышеописанную зависимость, примеси, обеспечивающие «фотогальванические» заряды, распределены в более мелкие области либо равномерно, но среднее расстояние между ними велико, что снижает квантовый выход фотогальванического эффекта. Действительно, если сторонняя сила, действующая на заряд, обеспечивает его продвижение в направлении оси C на длину L , а в конце пути этого направленного переноса нет необходимого захватывающего центра, который может обеспечить этому заряду следующий шаг, то он продвинется назад под действием ранее сформированного поля либо под действием поля покинутой ловушки. Ясно, что в представлениях такого кластерного распределения ловушек, обеспечивающих фотогальванические токи, имеются большие возможности для объяснения зависимости коэффициента k и соответственно запирающего поля от интенсивности, но однозначное решение требует знания конкретного механизма направленного переноса.

Отметим, что величины сторонних токов, текущих в кристаллографических направлениях X , Y , перпендикулярных оптической оси, малы. Их существование определяется, по-видимому, закосом оптической оси относительно обработанных плоскостей образца или неперпендикулярностью к оптической оси направления распространения света. В правильно ориентированных образцах нам удавалось наблюдать снижение $j_{ст x}$ - и $j_{ст y}$ -компонент тока по сравнению с $j_{ст z}$ на 4 порядка. Более того, в некоторых хорошо ориентированных образцах $j_{ст x}$ - и $j_{ст y}$ -компоненты тока меняют знак при сканировании тонким пучком. Это обусловлено разным закосом оптической оси относительно среднезафиксированного направления. По-видимому, такие измерения могут быть полезны при исследованиях доменной структуры кристаллов.

Во многих работах, посвященных эффекту оптического повреждения в кристаллах ниобата лития [6] и в других сегнетоэлектриках, большое внимание уделяется примеси железа как основному центру, обеспечивающему механизм направленного переноса. Это обусловлено сильной корреляцией поглощения Fe^{2+} -центров с максимумом фоторефрактивной чувствительности (с максимумом фотогальванического тока). В этой спектральной области лежит максимум k . Мы хотим обратить внимание на некоторую симметрию свойств, проявляющихся в легированных Fe кристаллах и отожженных в вакууме чистых образцах. Частично эта симметрия отражена на рис. 9. Одинаковый характер изменения при увеличении легирования и при увеличении времени отжига наблюдается, например, для величин k_0/k_e — отношение коэффициентов k для обыкновенной и необыкновенной волн (падает), β_0/β_e — отношение коэффициентов фотопроводимостей для обыкновенной и необыкновенной волн (растет). С увеличением степени легирования и времени отжига расширяется и область длин волн, при облучении которыми наблюдаются фотогальванические токи. Симметрия свойств и отсутствие токов в перпендикулярном оптической оси направлении свидетельствует лишь о пропорциональности фотогальванического тока поглощенной энергии, но не об уникальности Fe^{2+} -центра как источника фотогальванических зарядов.

VI. Заключение. Анализ полученных в работе экспериментальных результатов позволяет сделать следующие выводы:

1. Можно считать достоверно установленным, что изменение показателя преломления при облучении кристаллов $LiNbO_3$ фотоактивным светом вызвано электрическим полем. С хорошей точностью величина и знак этого поля описываются феноменологией фотогальванического эффекта. Особенно надежны данные для кристаллов, легированных железом с концентрацией $Fe \geq 0,01$ вес.%. Для номинально чистых образцов предположение о неоднородности распределения неконтролируемой примеси также разумно объясняет экспериментальные данные. Вопрос о микроскопической природе фотогальванического тока остается открытым.

2. Определяющее влияние на динамику оптического повреждения оказывает рассеяние. Спекл-структура когерентного светового пучка приводит к записи хаотически распределенных неоднородностей и последующему появлению локальных голограмм. В определенных условиях удается достичь «просветления» и добраться до насыщения, но «коридор просветления» достаточно узок. Заметим, что в большинстве экспериментальных работ исследуется запись голографических решеток. Не следует забывать, однако, что для каждого из пучков, образующих голограмму, справедливо все изложенное выше и уровень шума в записи определяется как геометрией опыта, так и достигнутым уровнем насыщения. Время выхода на насыщение может существенно отличаться от расчетного.

3. Обращает на себя внимание некоторая симметрия свойств легированных железом кристаллов и отожженных в вакууме чистых образцов. Она проявляется, в частности, для величин k_0/k_e , β_0/β_e . Симметрия свойств и отсутствие токов в перпендикулярном оптической оси направлении свидетельствует лишь о пропорциональности фотогальванического тока поглощенной энергии, но не об уникальности Fe^{2+} -центра как источника фотогальванических зарядов.

Авторы выражают благодарность В. И. Белиничеру и Б. И. Стурману за полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Glass A. M., von der Linde D. and Negran T. J. High-voltage bulk photovoltaic effect and photorefractive process in LiNbO_3 .— *Appl. Phys. Lett.*, 1974, vol. 25, № 4, p. 233.
2. Пашков В. А., Соловьева Н. М., Ангерт Н. Б. Наведенная оптическая неоднородность в ниобате лития во внешнем электрическом поле.— *ФТТ*, 1979, т. 21, № 1, с. 92.
3. Попов Б. Н., Фридкин А. М. Фотогальванический эффект в сегнетоэлектрических кристаллах.— *УФН*, 1978, т. 126, с. 657.
4. Glass A. M., von der Linde D., Auston D. H., Negran T. J. Excited state polarization and bulk photovoltaic effect.— *J. Elect. Mater.*, 1975, vol. 4, № 5, p. 915.
5. Krätzig E., Kurz H. Spectroscopic investigation of photovoltaic effects in doped LiNbO_3 .— *J. Electrochem. Soc.*, 1977, vol. 124, № 1, p. 131.
6. Kurz H., Krätzig E., Keune W. a. o. Photorefractive centers in LiNbO_3 studied by optical-Mössbauer- and EPR methods.— *Appl. Phys.*, 1977, vol. 12, № 4, p. 355.

Поступила в редакцию
24 июля 1979 г.

УДК 537.226.33

В. В. КУЛИКОВ, М. П. ПЕТРОВ, С. И. СТЕПАНОВ

(Ленинград)

МЕХАНИЗМЫ СТАРЕНИЯ ОБЪЕМНЫХ ГОЛОГРАММ В $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$

Фоторефрактивные кристаллы LiNbO_3 , как чистые, так и допированные, широко исследуются в последнее время в качестве объемных сред для голографической записи информации [1]. По сравнению с другими объемными фоточувствительными средами фоторефрактивные кристаллы обладают рядом характерных особенностей, в частности возможностью электрического управления условиями дифракции [2], а также возможностью наблюдения эффективной анизотропной дифракции [3]. Перечисленные преимущества позволяют существенным образом расширить функциональные возможности объемных сред в голографических системах хранения и обработки оптической информации. Однако в настоящее время существует ряд серьезных нерешенных проблем, препятствующих практическому внедрению рассматриваемых кристаллов, и в первую очередь проблема деградации записанной голограммы, как спонтанной (в темноте или на свету), так и под действием считывающего излучения. Например, темновое время хранения голограммы в номинально чистых или умеренно допированных Fe образцах LiNbO_3 составляет 1—3 мес [4] и с увеличением уровня допирования уменьшается до нескольких дней [5].

Экспериментально установлено также, что процедура термического фиксирования [6] позволяет увеличить время хранения голограмм на свету до нескольких лет и решить проблему деградации голограммы под действием считывающего излучения. Однако какой-либо последовательный анализ указанных проблем в литературе отсутствует. Цель настоящей работы — рассмотрение круга указанных явлений на примере $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ для оценки предельных возможностей кристаллов и выбора оптимальных режимов работы объемных голографических элементов на их основе.

В результате экспериментов, подтвердивших основные выводы теоретического анализа, впервые оценены абсолютные значения концентраций примесных центров, ответственных за фотовольтаический эффект, а также ионных примесей, обуславливающих термическое фиксирование в LiNbO_3 .

Теоретический анализ. При теоретическом анализе ограничимся учетом только двух каналов перераспределения заряда по объему кристал-