

С. МАЛИК

(Париж, Франция)

систем ближнего диапазона приводит к возбуждению электронов с примесных уровней ( $Fe^{2+}$ ) в зону проводимости кристалла. Эти свободные электроны смещаются в положительном направлении оси  $C$  (оси спонтанной поляризации) в отсутствие макроскопических электрических полей и градиента концентрации [1]. Такое смещение фотовозбужденных электронов объясняется в рамках объемного фотогальванического эффекта, связанного с асимметрией кристаллической решетки и с полярным характером кристалла [2]. Этот микроскопический процесс приводит к возникновению результирующего макроскопического тока, поскольку смещение электронов происходит в одном и том же направлении во всех областях кристалла.

После смещения на среднее расстояние  $L$  фотоэлектроны захватываются в состояния  $F^{3+}$ . Переход электронов с донорных состояний на ловушки поляризует материал и, следовательно, приводит к созданию электрического поля. Поскольку кристалл является электрооптическим, то поле пространственных зарядов приводит к изменению показателей преломления. Такие фотоиндуцированные изменения показателей преломления (эффект фоторефракции) в электрооптических кристаллах впервые наблюдались в экспериментах по нелинейной оптике [3]. Наблюдаемый эффект получил название «оптическое повреждение», поскольку ограничивал возможности применения этих кристаллов в нелинейной оптике; однако позднее он стал использоваться как важная основа для нового типа голографической записи в материалах [4].

Большинство проведенных ранее экспериментов ограничивалось измерениями индуцированного в материале двулучепреломления по дифракционной эффективности записываемой решетки. Эти измерения не дают информации о таких микроскопических величинах, как вероятность рождения свободного электрона при поглощении фотона  $\Phi$ , средняя длина пробега электронов. В нашем эксперименте для записи использовался световой пучок с прямоугольным сечением, позволяющий создавать в материале область записи в виде плоскопараллельного конденсатора. При этом измерялось изменение двулучепреломления в зависимости от падающей энергии. Из значений плотности фототока получены величины  $\Phi$  и  $L$ , а также насыщенное поле пространственного заряда и время диэлектрической релаксации. Все эти величины определены для разных длин волн из видимой области спектра.

В следующем разделе обсуждаются основные понятия, используемые для характеристики фоторефрактивных материалов. В п. 3 описан экспериментальный метод, применяемый для измерения двулучепреломления. Описание эксперимента, выполненного нами, дано в п. 4. В последнем разделе приведены экспериментальные данные и их обсуждение.

**2. Основные понятия, используемые для характеристики фотогальванического и фоторефрактивного эффектов в  $LiNbO_3:Fe$ .** Плотность фототока на начальном участке записи в кристалле. В работах [5, 6] показано, что при однородном освещении объема кристалла плотность фототока  $j$  в условиях короткого замыкания пропорциональна плотности поглощаемой мощности:

$$j = K\alpha I, \quad (1)$$

где  $I$  — интенсивность падающего света,  $\alpha$  — коэффициент поглощения,

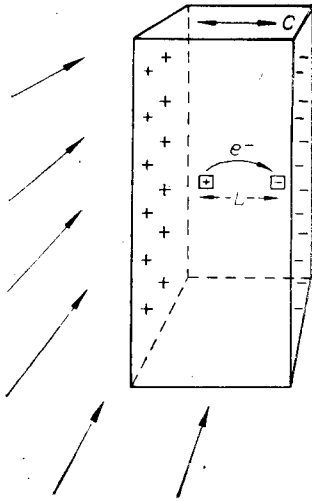


Рис. 1. Освещенный однородно кристалл  $\text{LiNbO}_3$ .

Миграция фотоэлектронов создает избыточный положительный заряд на донорных центрах и избыточный отрицательный заряд на ловушках. Эти заряды формируют электрический дипольный момент  $NeL$ .

$K$  — константа Гласса ( $K$  зависит от длины волны света и от природы примеси). В незакороченном кристалле соотношение (1) справедливо только на начальном участке экспозиции. Плотность тока  $j$  можно выразить через микроскопические величины  $\Phi$  и  $L$ . Для этого рассмотрим кристалл  $\text{LiNbO}_3$  в виде прямоугольного параллелепипеда, который освещается однородно (рис. 1). Количество электронов  $N$ , генерируемое за секунду в единице объема,

$$N = I\Phi(1 - \exp(-\alpha d))/d h\nu = I\alpha\Phi/h\nu. \quad (2)$$

Здесь  $d$  — размер кристалла вдоль направления распространения света,  $h\nu$  — энергия фотона. Предполагаем, что в ходе эксперимента концентрации центров поглощения и ловушек практически не меняются. Плотность тока  $j$  равна заряду, протекающему в одну секунду через поверхность единичной площади, перпендикулярную оси  $C$ . Поскольку каждый фотоэлектрон смещается на среднее расстояние  $L$  в направлении  $+C$  оси,  $j$  равна заряду, генерируемому в прямоугольном параллелепипеде единичного поперечного сечения ( $\perp$  оси  $C$ ) длиной  $L$  в секунду:

$$j = NeL = (\alpha I/h\nu)\Phi eL, \quad (3)$$

где  $e$  — заряд электрона. Сравнивая выражения (1) и (3), можно выразить константу Гласса  $K$  через  $\Phi$  и  $L$ :

$$K = (e/h\nu)\Phi L. \quad (4)$$

В наших рассуждениях не учтен тот факт, что во время возбуждения и захвата электрона происходит смещение соответствующих ионов. Используя принцип Франка — Кондона, Линде и Гласс показали, что среднее смещение заряда вдоль оси  $C$  характеризует полный процесс фотоионизации и захвата электрона. Вклад ионного тока в полный ток  $j$  мал, поэтому будем полагать, что он учитывается в константах  $K$  и  $L$ .

*Изменение фототока во времени.* Если кристалл находится в разомкнутом состоянии, то ток  $j$  приводит к изменению плотности заряда на полярных гранях кристалла (см. рис. 1). В наших экспериментах освещалась только узкая полоска кристалла, поэтому заряд накапливался на границах, отделяющих освещаемую область от остальных областей кристалла. Эти заряды создают поле пространственного заряда  $E$ , направленное навстречу фототоку, и, следовательно, изменение тока  $j$  во времени можно описать следующим образом:

$$j(t) = NeL - \sigma E(t). \quad (5)$$

Здесь  $\sigma$  — проводимость  $\text{LiNbO}_3$ . Поскольку темновая проводимость материала очень мала, можно считать, что

$$\sigma = N\tau e\mu = (\alpha I/h\nu)\Phi\tau e\mu, \quad (6)$$

где  $\tau$  — среднее время жизни фотоэлектронов в зоне проводимости,  $\mu$  — подвижность.

Для области записи в нашей геометрии электрическое поле  $E$  может быть выражено через ток  $j$ :

$$E(t) = \frac{1}{e} \int_0^t j(t) dt, \quad (7)$$

где  $\varepsilon$  — соответствующая компонента тензора диэлектрической проницаемости  $\text{LiNbO}_3$ . Комбинируя (5) и (7), имеем

$$\frac{dE}{dt} + \frac{\sigma}{\varepsilon} E = \frac{NeL}{\varepsilon}. \quad (8)$$

Решение данного уравнения примет вид

$$E(t) = (NeL/\sigma)[1 - \exp(-\sigma t/\varepsilon)], \quad (9)$$

где в качестве начальных условий предполагалось, что

$$E = 0 \quad \text{при} \quad t = 0.$$

Обозначая через  $T_0$  время диэлектрической релаксации,  $E_{\text{нас}}$  — поле насыщения:

$$T_0 = \varepsilon/\sigma, \quad (10)$$

$$E_{\text{нас}} = NeL/\sigma, \quad (11)$$

можно записать (9) в виде

$$E(t) = E_{\text{нас}}[1 - \exp(-t/T_0)]. \quad (12)$$

Используя (2) и (6), перепишем выражения для  $T_0$  и  $E_{\text{нас}}$ :

$$T_0 = (\varepsilon/\Phi\mu\tau)(h\nu/\varepsilon\alpha I), \quad (13)$$

$$E_{\text{нас}} = L/\mu\tau. \quad (14)$$

Наклон экспоненциальной кривой (12) при  $t = 0$  равен

$$\left(\frac{dE}{dt}\right)_{t=0} = E_{\text{нас}}/T_0 = \frac{\alpha I}{h\nu} \frac{\varepsilon}{\varepsilon} \Phi L. \quad (15)$$

*Эффект фоторефракции.* Кристаллы  $\text{LiNbO}_3$  принадлежат к тригональной системе и обладают симметрией  $3m$ . Если в кристалле имеется электрическое поле, направленное вдоль полярной оси, то изменение обыкновенного показателя преломления

$$\Delta n_o = -(1/2) n_o^3 r_{13} E. \quad (16)$$

Для необыкновенного показателя преломления

$$\Delta n_e = -(1/2) n_e^3 r_{33} E. \quad (17)$$

Здесь  $r_{13}$  и  $r_{33}$  — соответствующие коэффициенты электрооптического тензора. Для ниобата лития  $\Delta n_e \approx 3\Delta n_o$ . Изменение двулучепреломления составляет:

$$(\Delta n_o - \Delta n_e) = (1/2) (n_e^3 r_{33} - n_o^3 r_{13}) E. \quad (18)$$

Измеряя изменение двулучепреломления, можно по формуле (18) определить индуцированное поле  $\bar{E}$ .

Фоторефрактивная чувствительность  $S$  регистрирующего материала, т. е. отношение изменения показателя преломления к плотности падающей энергии, на начальной стадии экспозиции находится из (15) и (17):

$$S = \frac{\Delta n_e}{I\Delta t} = \frac{1}{2} n_e^3 r_{33} \frac{\alpha}{h\nu} \frac{\varepsilon}{\varepsilon} \Phi L \quad (19)$$

( $\Delta t$  — время экспозиции). Отметим, что величина  $\Delta n_e$  может быть вычислена по измеренным значениям двулучепреломления исключением  $E$  из выражений (17), (18):

$$\Delta n_e = \frac{n_e^3 r_{33}}{n_o^3 r_{13} - n_e^3 r_{33}} (\Delta n_o - \Delta n_e). \quad (20)$$

Следовательно, чувствительность  $S$  можно записать таким образом:

$$S = \frac{n_e^3 r_{33}}{n_o^3 r_{13} - n_e^3 r_{33}} \left[ \frac{\Delta n_o - \Delta n_e}{I\Delta t} \right]. \quad (21)$$

Из (21), (13) и (14) видно, что величины  $\Phi$  и  $L$  играют основную роль в определении таких характеристик фоторефракции, как чувствительность, время диэлектрической релаксации, максимально достижимое значение  $\Delta n$ . Важное значение имеет их зависимость от длины волны света, используемого для записи. При записи изображений с высокими пространственными частотами очень важно знать также среднюю длину пробега электронов  $L$ , поскольку она определяет смещение записанной решетки относительно распределения интенсивности падающего на кристалл света. Это пространственное смещение приводит к перекачке энергии из одного интерферирующего пучка в другой в процессе записи [7].

**3. Измерение изменений двулучепреломления.** Измерения индуцированного двулучепреломления в  $\text{LiNbO}_3$  выполнены Ченом [8] при записи пятна пучком He—Ne-лазера, сфокусированного в область диаметром  $\sim 0,2$  мм. Использовался обычный нулевой метод регистрации, в котором квазимонохроматический пробный пучок, прошедший через кристалл, гасился с помощью компенсатора. При использовании пробного пучка диаметром  $\sim 0,03$  мм Чен измерил изменение двулучепреломления как по оси  $C$ , так и по оси  $B$  кристалла, внутри и вне области записи. Серезе и Гольднер [9], применив улучшенный вариант нуля-метода, измерили изменение двулучепреломления в зависимости от длины волны. При этом для записи они использовали ксеноновую лампу с монохроматором и лазерный пучок для считывания распределения  $\Delta n$ .

Наша установка [10] отличается от описанных выше двумя важными особенностями. Во-первых, в качестве пробного пучка нами использовался белый свет, а компенсатор устанавливался не на минимальное пропускание, а на чистый свет прошедшего излучения. Во-вторых, для записи применялся квазипараллельный пучок прямоугольного сечения ( $5 \times 0,2$  мм<sup>2</sup>), который создавал область записи в виде плоскопараллельного конденсатора. В такой геометрии области записи измеряемые значения изменения двулучепреломления  $n$ , следовательно, поле пространственного заряда  $E$  связаны простым аналитическим выражением с электрической поляризацией и с длиной пробега  $L$ . Поскольку целью нашего эксперимента является определение не просто чувствительности фоторефракции, а длины  $L$ , поэтому для записи использован пучок прямоугольного сечения, наиболее подходящий для этой задачи.

**4. Описание экспериментальной установки.** На рис. 2 представлена схема нашей экспериментальной установки. Коллимированный пучок квазимонохроматического света от ртутной лампы  $S_1$  мощностью 250 Вт с необходимыми фильтрами или от аргонового лазера освещает щель  $5 \times 0,2$  мм<sup>2</sup>. Линзы  $L_1$  и  $L_2$  формируют изображение щели на кристалле  $\text{LiNbO}_3$  ( $C_1$ ). Полярная ось кристалла перпендикулярна высоте щели.

Щель находится в передней фокальной плоскости линзы  $L_1$ , а кристалл — в задней фокальной плоскости линзы  $L_2$ . Расстояние между линзами  $L_1$  и  $L_2$  равно сумме их фокусных расстояний. При таком расположении линз получаем резкое изображение щели на  $C_1$ , при этом световой луч проходит через кристалл квазипараллельным пучком. Поляризуя область записи, падающий пучок создает в кристалле плоскопараллельный конденсатор. Для устранения распространения пучка света во время записи за кристаллом  $C_1$  устанавливается маска  $m$ . Источником света для системы наблюдения служит лампа  $S_2$ . Линейно-поляризованный свет лампы  $S_2$  вводится в оптическую часть установки с помощью зеркала  $M$ , при этом маска  $m$  убирается. Второй кристалл  $\text{LiNbO}_3$  ( $C_2$ ), идентичный  $C_1$ , с полярной осью, ортогональной оси  $C_1$ , служит для компенсации естественного двулучепреломления исследуемого кристалла  $C_1$ . Поляризаторы  $P_1$  и  $P_2$  скреплены и ориентированы под углом  $45^\circ$  к осям кристаллов  $C_1$  и  $C_2$ . Разница оптических путей для обыкновенного и необыкновенного лучей, вносимая  $C_1$  и  $C_2$ , пропорциональна квадрату угла падения (для малых углов) и равна нулю для нормального падения [11]. Поэтому при освещении квазипараллельным пучком белого света системы кристаллов при нормальном падении все поле наблюдения будет

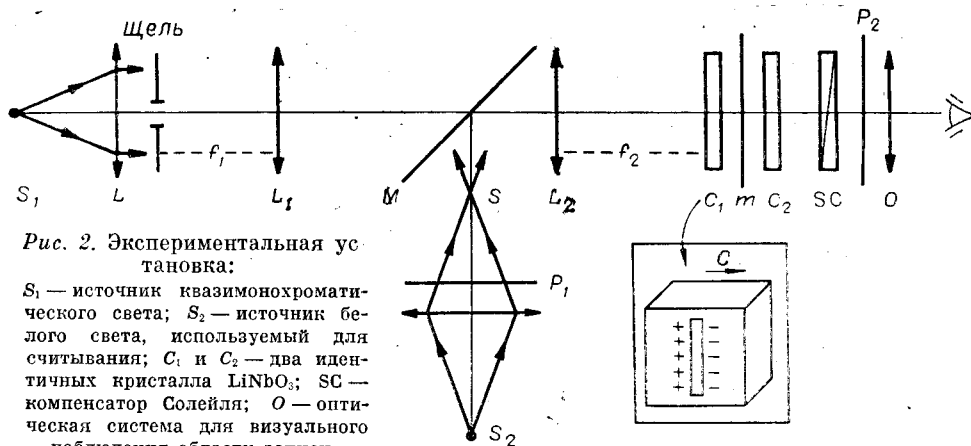


Рис. 2. Экспериментальная установка:

$S_1$  — источник квазимонохроматического света;  $S_2$  — источник белого света, используемый для считывания;  $C_1$  и  $C_2$  — два идентичных кристалла  $\text{LiNbO}_3$ ; SC — компенсатор Солейля;  $O$  — оптическая система для визуального наблюдения области записи.

темным. Возникающее однородное окрашивание поля наблюдения можно устранить с помощью компенсатора или соответствующим наклоном кристалла  $C_2$  относительно  $C_1$ . На рис. 2 SC обозначает компенсатор Солейля. Изображение источника  $S_2$  лежит в фокальной плоскости  $L_2$ , поэтому на систему кристаллов падает квазипараллельный пучок.  $O$  — система, проецирующая увеличенное изображение области записи в кристалле  $C_1$  для наблюдения глазом.

До проведения измерения двулучепреломления компенсатор подстраивался таким образом, чтобы в поле наблюдения был чистый цвет и отменялось положение настройки компенсатора. Затем кристалл  $C_1$  экспонировалась записывающим светом определенной интенсивности и определенное время. При этом цвет области записи изменялся и компенсатор снова подстраивался таким образом, чтобы наблюдался исходный чистый цвет. Использование компенсатора позволяет измерить  $d$  ( $\Delta n_e - \Delta n_o$ ), где  $d$  — толщина кристалла. Получив значения  $(\Delta n_e - \Delta n_o)$ , можно вычислить поле пространственного заряда  $E$ , используя выражение (19). Таким образом, можно измерить зависимость  $E$  от времени и непосредственно подставить полученные экспериментальные значения в теоретическую зависимость, представленную выражением (12). Определяем значения  $E_{\text{нас}}$  и  $T_0$  и вычисляем  $\Phi L$ , используя (15).

Если нас интересуют только значения  $\Phi L$  и чувствительность фоторефракции  $S$ , то нет необходимости находить полную зависимость  $E(t)$ . Значения  $\Phi L$  и  $S$  можно определить на начальном линейном участке  $E(t)$  по  $dE/dt$ . Если кристалл невысокого оптического качества или лазерный пучок, используемый для записи, недостаточно однороден, то определение  $\Phi L$  и  $S$  по начальному участку является более точным, чем из отношения  $E_{\text{нас}}/T_0$ . Такое отличие обусловлено тем, что любые неоднородности приводят к созданию сложных интерференционных эффектов в кристалле, нарушающих экспоненциальную зависимость поля пространственного заряда от времени.

**5. Результаты и обсуждение.** Измерения выполнены на кристалле  $\text{LiNbO}_3$  толщиной 2 мм, содержащем 0,015 вес. % примеси железа. На рис. 3 представлена зависимость коэффициента поглощения от длины волны, измеренная с помощью спектрофотометра «Сагу-14». Типичная зависимость поля пространственного заряда от времени экспозиции приведена на рис. 4. Экспериментальные значения поля обозначены точками, сплошной линией показана зависимость, описываемая выражением (12) для значений  $E_{\text{нас}}$  и  $T_0$ , полученных прямой подстановкой. Область записи создавалась светом ртутной лампы на  $\lambda = 436$  нм. Плотность поглощаемой мощности  $\sim 15$  мВт/см<sup>2</sup>. Насыщенное значение поля пространственного заряда 51 кВ/см, что соответствует  $\Delta n_e \approx 10^{-3}$ . Изменения показателя преломления оставались линейными до значения  $\sim 3 \times 10^{-4}$ . Для 2-миллиметрового кристалла это соответствует изменению

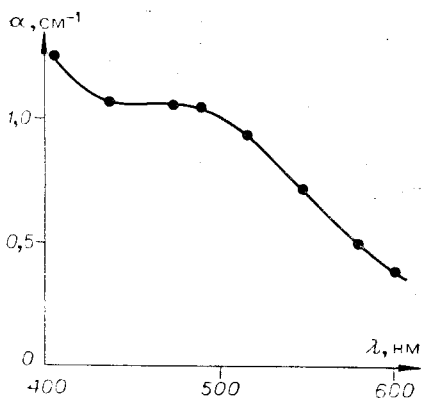


Рис. 3. Спектральная зависимость коэффициента поглощения  $\text{LiNbO}_3$ .

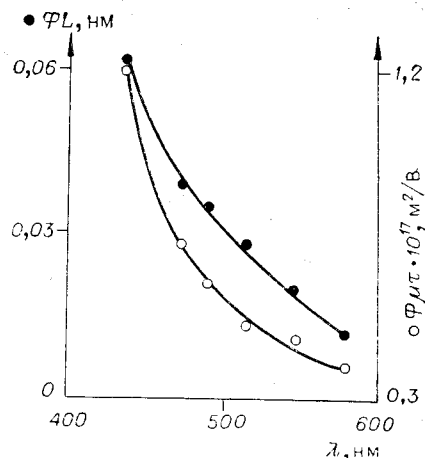


Рис. 5. Экспериментальные значения  $\Phi L$  и  $\Phi \mu \tau$  для шести длин волн (436, 546, 579 нм — ртутная лампа; 472,7, 488, 514,5 нм — аргоновый лазер).

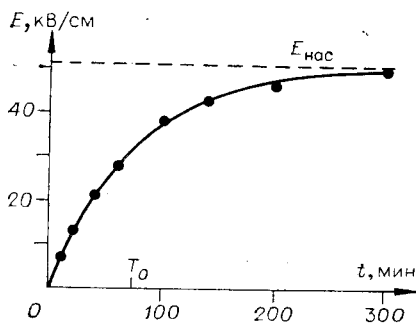


Рис. 4. Зависимость поля насыщения от времени экспозиции:

сплошная линия — теоретическая зависимость, описываемая выражением (12) для  $E_{\text{нас}} = 51$  кВ/см и  $T_0 = 75$  мин. Значения для  $E_{\text{нас}}$  и  $T_0$  получены по экспериментальным значениям (точки).

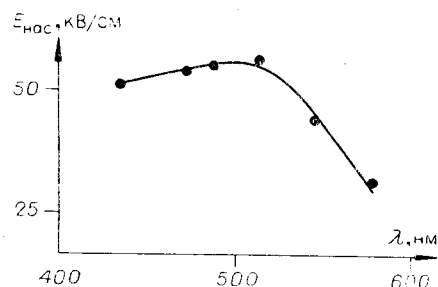


Рис. 6. Экспериментальные значения  $E_{\text{нас}} (=L/\mu\tau)$  для шести длин волн видимого диапазона.

фазы на 2л. Таким образом, кристалл обладает большим динамическим диапазоном и, следовательно, может быть использован для записи информации.

На рис. 5 показаны значения  $\Phi L$  для трех ртутных и трех аргоновых линий излучения. Величина  $\Phi L$  возрастает в  $\sim 5$  раз при уменьшении длины волны от 579 до 436 нм. Если предположить, что  $\Phi \approx 10^{-2}$  в синей области спектра, то средняя длина пробега  $L$  составит  $\sim 6$  нм. На рис. 5 приведена также зависимость  $\Phi \mu \tau$  от длины волны, полученная подстановкой экспериментального значения  $T_0$  в (13). Если предположить, что  $\mu$  и  $\tau$  не зависят от  $\lambda$ , то возрастание  $\Phi \mu \tau$  с уменьшением длины волны может быть связано только с увеличением  $\Phi$ . Следовательно, хотя измерения значений  $T_0$  и не приводят к определению абсолютного значения  $\Phi$ , тем не менее они позволяют получить информацию о спектральной зависимости  $\Phi(\lambda)$ .

На рис. 6 представлена зависимость  $E_{\text{нас}} (=L/\mu\tau)$  от длины волны света, осуществляющего запись. Здесь, как и для  $\Phi \mu \tau$ , изменение  $E_{\text{нас}}(\lambda)$  может быть связано только с изменением  $L$ . Рассматривая кривые на рис. 5 и 6, можно сделать вывод, что в синей области спектра (436—500 нм) возрастание  $\Phi L$  с уменьшением  $\lambda$  полностью обусловлено возрастанием  $\Phi$ . В спектральной области (500—579 нм)  $\Phi$  и  $L$  увеличиваются с уменьшением длины волны.

При анализе, выполненном в п. 2, мы пренебрегали темновой проводимостью материала. При малых уровнях записи темновой проводи-

мостью пренебрегать нельзя, поэтому выражения для  $E_{\text{нас}}$  и  $T_0$  изменяются. Величина  $\Phi L$ , однако, остается без изменений.

Таким образом, при помощи нашего экспериментального метода нами получены микроскопические величины  $\Phi_{\text{вт}}$ ,  $L/\mu\text{т}$  и  $\Phi L$ , а также макроскопические параметры, такие как время диэлектрической релаксации, значение поля насыщения, чувствительность фоторефракции и фотопроводимости.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Von Baltz R.—Ferroelectrics, 1981, vol. 35, p. 131.
2. Von der Linde D., Glass A. M.—Appl. Phys., 1975, vol. 8, p. 85.
3. Ashkin A., Boyd D. D., Dziedzic J. M., Smith R. G., Ballman A. A., Levinstein H. J., Nassau K.—Appl. Phys. Lett., 1966, vol. 9, p. 72.
4. Chen F. S., LaMacchia J. T., Frazer D. B.—Appl. Phys. Lett., 1968, vol. 13, p. 223.
5. Glass A. M., Von der Linde D., Negran T. J.—Appl. Phys. Lett., 1974, vol. 25, p. 233.
6. Fridkin V. M., Grekov A. A., Ionov P. V., Rodin A. I., Savchenko E. A., Mikhailina K. A.—Ferroelectrics, 1974, vol. 8, p. 433.
7. Staebler D. L., Amodei J. J.—J. Appl. Phys., 1972, vol. 43, p. 1042.
8. Chen F. S.—J. Appl. Phys., 1969, vol. 40, p. 3389.
9. Serreze H. B., Goldner R. B.—Appl. Phys. Lett., 1973, vol. 22, p. 626.
10. Grousseau R., Henry M., Mallick S., Xu S. L.—J. Appl. Phys. (to be published).
11. Françon M., Mallick S.—In: Polarization Interferometers. N. Y.: John Wiley, 1974.

*Поступила в редакцию 14 февраля 1983 г.*

УДК 778.38+681.785.57

П. ГЮНТЕР

(Цюрих, Швейцария)

### УСИЛЕНИЕ ИЗОБРАЖЕНИЯ И СОПРЯЖЕНИЕ ФАЗЫ СВЕТОВОЙ ВОЛНЫ В ФОТОРЕФРАКТИВНЫХ МАТЕРИАЛАХ

**Введение.** Фотоиндуцированные изменения показателя преломления в электрооптических материалах могут быть использованы для записи фазовых голограмм в объеме фоторефрактивного кристалла [1]. Запись объемных голограмм сопровождается интерференцией падающего светового пучка с дифрагированным пучком внутри записывающего материала. Этот эффект вызывает запись новой решетки, которая может добавляться или вычитаться из начальной. В результате решетка оказывается неоднородной по толщине материала и может иметь фазовый сдвиг относительно начальной [2]. Перекачка энергии между записывающими пучками в основном зависит от фазового сдвига между интерференционной картиной и записанной решеткой. Показано, что стационарная перекачка энергии будет запрещена, если фазовый сдвиг между интерферограммой и записанной голограммой будет равен 0 или  $\pi$  вследствие разрушающей интерференции, вызванной брэгговским дифрагированным пучком с фазовым сдвигом  $\pi/2$  относительно записывающего луча, распространяющегося в том же направлении. Следовательно, максимум перекачки энергии получается в том случае, если есть дополнительный фазовый сдвиг  $\pi/2$  между недифрагированным сигнальным пучком и дифрагированным опорным пучком. По этой причине постоянный фазовый сдвиг решетки относительно распределения интенсивности равен  $\pi/2$  [2]. Такой фазовый сдвиг может быть получен, если основной механизм записи диффузионный либо если длина фотопереноса  $L_E$  сравнима или больше шага решетки  $\Lambda$  (нарушение квазинейтральности) [3]. Перекачка энергии между интерферирующими пучками внутри фотореф-