

2044-51
3859
Министерство высшего и среднего специального образования
Латвийской ССР

Латвийский ордена Трудового Красного Знамени государственный
университет им. П.Стучки

Академия наук Латвийской ССР
Институт физики

На правах рукописи

УДК 621.375.826:537.226.4

АУГУСТОВ Петерис Алфредович

ВЛИЯНИЕ ВНЕШНЕГО ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ, ИНТЕНСИВНОСТИ
СВЕТА И ТЕМПЕРАТУРЫ НА ФОТОРЕФРАКЦИЮ В КРИСТАЛЛАХ
НИОБАТА И ТАНТАЛАТА ЛИТИЯ

О1.04.07 - физика твердого тела

Д и с с е р т а ц и я

на соискание ученой степени кандидата
физико-математических наук

2133-5
Научный руководитель:
доктор физико-математических
наук, член-корр. АН Латв. ССР,
профессор
К.К.Шварц

Рига - 1982

СОДЕРЖАНИЕ

	Стр.
В в е д е н и е	5
Глава I. Фоторефракция в кристаллах ниобата и танталата лития	II
I.1. Свойства кристаллов ниобата и танталата лития	I2
I.1.1. Спектральные характеристики	I2
I.1.2. Разрушение кристаллов светом большой мощности	I3
I.1.3. Электрооптический эффект в кристаллах ниобата и танталата лития	I4
I.1.4. Проводимость кристаллов ниобата и танталата лития	I6
I.2. Факторы, влияющие на фоторефракцию в кристаллах ниобата и танталата лития	22
I.2.1. Влияние состава кристаллов на фоторефракцию	22
I.2.2. Влияние примесей на фоторефракцию в ниобате и танталате лития	23
I.2.3. Действие внешнего электрического поля	27
I.2.4. Температурная зависимость фоторефракции и фиксации записи	30
I.2.5. Фотоиндуцированный электрический пробой	36
I.2.6. Усиление рассеяния когерентного света	37

	Стр.
I.3. Механизм фоторефракции в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3	38
I.3.1. Механизм Чена	38
I.3.2. Модель Джонстона	45
I.3.3. Фотовольтаический механизм фоторефракции	46
I.3.4. Другие механизмы фоторефракции	54
Основные выводы по обзору литературы	58
Глава 2. Объекты и методика эксперимента	59
2.1. Объекты исследования	59
2.2. Экспериментальная установка для измерения изменений двулучепреломления	61
2.2.1. Оптическая схема и методика измерений	62
2.2.2. Система автоматической компенсации разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами	64
2.3. Методика измерения фоторефракции	69
2.4. Исследование топографии ФР	70
2.5. Определение параметров лазерного пучка	74
2.6. Измерения и стабилизация температуры	79
2.7. Голографическая методика	86
Глава 3. Кинетика и пространственное распределение фоторефракции в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3	87
3.1. Кинетика фоторефракции	87
3.2. Распределение изменений двулучепреломления в окрестности освещенной области	100

3.3. Зависящее от экспозиции анизотропное рассеяние когерентного света	I06
Глава 4. Влияние внешнего электрического поля на пара- метры фоторефракции и поверхностный пробой в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$	
4.1. Влияние внешнего электрического поля	I15
4.2. Поверхностная рекомбинация электрических зарядов и фоторефракция в кристаллах $LiNbO_3-Fe$ и $LiTaO_3-Fe$	I25
Выводы	I36
Глава 5. Зависимость фоторефракции в кристаллах ниобата и танталата лития от интенсивности света и температуры	
5.1. Исследование фоторефракции при больших интенсивностях света	I37
5.2. Фотоволтаический механизм фоторефракции и зависимость $\delta\Delta n_{CT}$ от интенсивности света	I46
5.3. Зависимость фоторефракции в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ от температуры	I58
5.3.1. Релаксация фоторефракции в кри- сталлах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$	I60
5.3.2. Зависимость стационарных величин фоторефракции от температуры	I71
Выводы	I78
Основные результаты работы и выводы	I79
Литература	I82

В В Е Д Е Н И Е

Актуальность проблемы. Среди различных фотостимулированных процессов особое положение занимает явление фоторефракции, открытое А.Ашкиным и сотр. [1] в некоторых сегнетоэлектриках. Это явление относится к фотоиндуцированным реакциям, в которых изменение действительной части комплексного показателя преломления $\tilde{n} = n - i\kappa$ существенно больше, чем мнимой ($\Delta n/n \gg \Delta \kappa/\kappa$). Это обстоятельство представляет большой интерес для фазовой записи информации. Для электрооптических модуляторов света фоторефракция является нежелательным эффектом, так как приводит к ухудшению параметров модуляции света (откуда и первое название эффекта - "Оптическое повреждение"). Дальнейшие исследования фоторефракции в сегнетоэлектриках выявили целый ряд особенностей, представляющих общий интерес для физики твердого тела и физики сегнетоэлектриков и электрооптических кристаллов в частности. Было обнаружено сильное влияние примесей в кристаллах на параметры фоторефракции и корреляция фоторефракции с аномальным фотовольтаическим эффектом [2], физическая природа которого пока изучена слабо. Это, с одной стороны, указывает на сложность явления фоторефракции в сегнетоэлектриках, а с другой - позволяет использовать оптические методы исследования не только для определения величины индуцированного изменения показателя преломления, но также использовать эти методы для изучения самого аномального фотовольтаического эффекта (оценка индуцированных светом в объеме кристалла электрических полей и др.).

Фоторефракция сразу привлекла также внимание практиков. Уже в 1968 году появилась первая работа по записи голограмм в кристаллах $LiNbO_3$ [5]. На этих же кристаллах было открыто явление перекачки энергии между записывающими голограмму световыми пучками. Эти исследования служили началом динамической голографии.

Все выше изложенное свидетельствует как об актуальности научной проблематики фоторефракции, так и говорит о ее практическом значении для оптической записи и создания светостойких электрооптических модуляторов света [6 - II].

Состояние проблемы. К началу исследований диссертанта (1975 г.) были предложены несколько механизмов фоторефракции (ФР) [2, 12, 13], показана эффективность оптических регистрирующих сред с использованием явления ФР [5, 14], однако, даже не говоря о деталях механизмов, нельзя было какому-либо из них отдать предпочтение. В начале исследований ФР Чен [12] предложил идею о существовании в кристалле электрического поля, ответственного за ФР, а Джонстон [13] выдвинул альтернативный механизм, в котором электрические заряды перераспределяются из-за изменений поляризации кристалла при освещении его видимым светом. В работах Гласса и др. [8, 15] была показана корреляция фотовольтаического эффекта и фоторефракции в кристаллах $LiNbO_3 - Fe$ Леванюком и др. [16, 17] показана возможность ФР без протекания постоянного тока в освещенной области кристалла. Диффузионный механизм ФР рассматривался Амодеем [18, 19], а также другими авторами [20 - 23]. По-видимому, все названные механизмы в зависимости от конкретной ситуации могут существовать в

$LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ и создавать ФР. Однако вклад каждого из механизмов полностью не выяснен [9, 24 - 27, 28 - 31] .

Природа и микроструктура фоторефрактивных центров также окончательно не установлена.

Примесь небольших количеств железа в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ резко увеличивает скорость возникновения и максимальную величину дифракционной эффективности голограмм и во многих работах Fe^{2+} предполагается донорами, а Fe^{3+} - акцепторами электронов в процессах ФР [6, 32, 33] . Так как и в недопированных кристаллах $LiNbO_3$ методом ЭПР обнаружена примесь Fe , концентрация которой коррелирует с величиной ДЭ [14] , то в недопированных кристаллах $LiNbO_3$ ФР также можно объяснить примесью Fe . Однако экспериментальные исследования ФР в зависимости от состава кристаллов дают основания центрами ФР предположить и кислородные вакансии [34, 35] . Обсуждаются также комплексы - железо-кислородная вакансия [36, 37] , привлекательные с точки зрения анизотропного потенциала, который в теории Гласса [2] ответственен за фотовольтаический ток и, следовательно, ФР.

Для уточнения механизма ФР и практического применения кристаллов в оптических устройствах интерес представляет максимальные величины ФР, достижимые на кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$, однако такие исследования в непрерывном режиме облучения на этих кристаллах с разной концентрацией примеси не проведены. Не исследовалась ФР в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ при температурах ниже комнатных, хотя эта область температур привлекательна по нескольким причинам: понижение температуры увеличивает стационарные значения и время сохранения ФР; пока-

зано, что около 200 К имеется максимум термостимулированной люминесценции гамма-облученных кристаллов LiNbO_3 , связанный с оптически активными центрами [38], которые могут быть взаимосвязаны и с процессом возникновения ФР.

По-разному в литературе интерпретируются спонтанные скачки ДЭ или изменений показателей преломления, наблюдаемые в $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ во время оптической записи [1, 2, 39, 40].

Цель работы - выяснение закономерностей фоторефракции - зависимость от внешнего электрического поля, температуры и интенсивности света в кристаллах LiNbO_3 , $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$, LiTaO_3 и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$.

Объекты исследования. Исследовались кристаллы LiTaO_3 и LiNbO_3 как номинально чистые, так и с примесями (Fe , Cu). Часть образцов из LiNbO_3 были выращены и обработаны в Институте физики АН Латв.ССР, а часть получена на Физическом факультете МГУ им. М.В.Ломоносова; кристаллы LiTaO_3 выращены в Харьковском ВНИИ монокристаллов.

Методы исследования. Основным экспериментальным методом был поляризационно-оптический метод с автоматической компенсацией. Использовалась голографическая методика и абсорбционная спектроскопия.

Научная новизна работы сводится к установлению нижеуказанных закономерностей, а также созданию оригинальной измерительной установки.

1. Установлено, что фоторефракция в кристаллах LiNbO_3 , $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$, LiTaO_3 и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$ зависит от интенсивности света (10^{-2} - 10^5 Вт.см $^{-2}$) и температуры (100 - 500 К).

2. При больших интенсивностях света стационарные значения изменений двулучепреломления ($\delta\Delta n_{\text{СТ}}$) во всех изученных кристаллах близки.

3. Спонтанное скачкообразное уменьшение δn определяется процессами поверхностной рекомбинации индуцированного светом объемного заряда.
4. Изучено зависящее от экспозиции возбуждающего света анизотропное рассеяние когерентного света в $LiNbO_3-Fe$, $LiTaO_3-Fe$, обнаружено влияние толщины образцов на индикатриссу рассеяния и подтверждена дифракционная природа этого явления.
5. Разработана поляризационно-оптическая лазерная установка с автоматической компенсацией, позволяющая проводить прямые измерения кинетики и топографии фоторефракции.

Практическая ценность. Полученные результаты могут быть использованы для поиска материалов для оптоэлектроники (оптические регистрирующие материалы, электрооптические модуляторы света и др.), а также для проверки оптических элементов для оптоэлектроники и лазерной техники.

Защищаемые положения:

1. Установленные зависимости фоторефракции от температуры и интенсивности света в кристаллах $LiNbO_3$, $LiNbO_3-Fe$, $LiTaO_3$ и $LiTaO_3-Fe$ коррелируют с аномальным фотовольтаическим эффектом в области интенсивности света до 10^5 Вт · см⁻² и в температурном диапазоне от 100 К до 500 К.
2. Температурная зависимость времени сохранения фоторефракции объясняется наличием двух различных по глубине центров захвата.
3. Поверхностная рекомбинация в кристаллах $LiNbO_3-Fe$, $LiTaO_3-Fe$ приводит к спонтанному скачкообразному уменьшению фоторефракции.
4. Индуцированное светом анизотропное рассеяние света объясняется явлением фоторефракции и созданной в кристалле голографической решеткой.

Диссертация состоит из введения, пяти глав, выводов и списка литературы.

Первая глава является обзорной. В ней кратко рассмотрены некоторые свойства кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$, играющие важную роль в процессах фоторефракции, влияние состава кристаллов, внешнего электрического поля, температуры и других факторов на фоторефракцию, а также основные механизмы фоторефракции.

Во второй главе приводятся данные об объектах исследования ($LiNbO_3$, $LiTaO_3$) и рассмотрена методика измерения изменений двулучепреломления.

Третья глава посвящена изучению временной зависимости фоторефракции, распределения изменений двулучепреломления в освещенной области кристалла и явления рассеяния когерентного света.

В четвертой главе приведены экспериментальные результаты по влиянию внешнего электрического поля на величину фоторефракции в кристаллах $LiNbO_3$, $LiTaO_3$ и по исследованию спонтанных скачков фоторефракции.

В пятой главе изучается зависимость фоторефракции от интенсивности света и температуры. Приведены экспериментальные результаты по релаксации фоторефракции.

Г л а в а I

ФОТОРЕФРАКЦИЯ В КРИСТАЛЛАХ НИОБАТА И ТАНТАЛАТА ЛИТИЯ

В кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ фоторефракция (ФР), т.е. изменение двулучепреломления сегнетоэлектрических кристаллов при воздействии света, впервые наблюдались Ашкиным и др. [1], однако в работе Петерсона с сотрудниками [41], опубликованной на два года раньше при исследованиях электрооптического эффекта в ниобате лития наблюдались явления, которые в настоящее время можно оценить как проявление ФР.

Уже Ашкиным и др. [1] было найдено, что эффект ФР вызывает видимый и ультрафиолетовый свет, но ФР отсутствует при облучении кристаллов инфракрасным светом (с длиной волны 1,15 мкм и 1,06 мкм). Изменения показателей преломления достигали стационарных значений за минуты и сохранялись в темноте несколько месяцев. Стирание ФР можно было осуществить нагревом кристаллов до 170°C.

В некоторых образцах $LiNbO_3$ наблюдались пульсации рассеянного эффектом фоторефракции света, а стационарное состояние величины фоторефракции не наступило.

Изменения показателей преломления, оцениваемые поляризационно-оптическим методом, по величине достигали $2 \cdot 10^{-4}$. Если данное изменение показателей преломления вызвано электрооптическим эффектом, то это подразумевает наличие внутреннего электри-

ческого поля, равное приблизительно 10 кВ/см.

В работе [1] не было дано объяснения этого явления, однако авторы выяснили ряд экспериментальных особенностей и указали на фоточувствительность ниобата и танталата лития и других кристаллов, что послужило в дальнейшем применению этих материалов в качестве голографических регистрирующих сред.

Эффект фоторефракции оказался весьма сложным явлением физики твердого тела, он связан со многими параметрами кристаллов и целесообразно коротко остановиться на некоторых важных в процессах фоторефракции свойствах использованных в наших экспериментах кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$.

1.1. Свойства кристаллов ниобата и танталата лития

Кристаллы ниобата и танталата лития обычно выращиваются методом Чохральского. Ниобат лития плавится при температуре 1260°C, а танталат лития - при 1650°C [42]. Оба кристалла являются сегнетоэлектриками с температурами Кюри (T_c) 1210°C (ниобат) и 660°C (танталат) соответственно. Кристаллы могут быть выращены с разной стехиометрией (соотношение Li к Nb или Ta) [32, 42]. Стехиометрия влияет на температуру Кюри T_c и оптические свойства [32, 43].

1.1.1. Спектральные характеристики

Кристаллы ниобата и танталата лития прозрачны в интервале спектра от 0,33 до 5,0 мкм. Результаты по спектрам поглощения и люминесценции редкоземельных ионов (Nd^{3+} ; Ho^{3+} ; Tu^{3+}) в ниобате лития обобщены в работе [42]. Редкоземельные элементы расположены в двух структурно неэквивалентных октаэдрах с крис-

таллическим полем низкой симметрии и искажением постоянной решетки около примеси.

Легирование $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ переходными элементами дает широкие дополнительные полосы поглощения, и некоторые из них (Fe , Cu и др.) сильно влияют на светочувствительность фоторефракции (см. раздел I.2.2).

Как в чистых, так и в легированных кристаллах ниобата и танталата лития наблюдается пик поглощения с максимумом около 2,8 мкм, который приписывается гидроксильной группе OH^- . В [44] при сопоставлении спектров поглощения при 2,87 мкм и измерений концентрации N при помощи ЯМР в ниобате лития найдена связь между концентрацией $OH^-(N)$ и коэффициентом поглощения $\propto (cm^{-1})$

$$N = (3 \pm 1) \cdot 10^{19} \cdot \alpha, \text{ ионы.см}^{-3} \quad (I.1)$$

Выражение (I.1) дает возможность определить концентрацию при помощи простых спектральных измерений.

Исследования края полосы фундаментального поглощения $LiNbO_3$ показали слабый, почти не заметный дихроизм. Дополнительные полосы поглощения в запрещенной зоне $LiNbO_3$, связанные с дефектами кристаллической решетки, обладают большим дихроизмом. При понижении температуры наблюдается коротковолновый сдвиг края фундаментального поглощения $LiNbO_3$ [45]. Зонная структура $LiNbO_3$ рассмотрена в работе [46]. Общепринятая ширина запрещенной зоны $LiNbO_3$ около 3,7 эВ [45].

I.1.2. Разрушение кристаллов светом большой мощности

Как уже было отмечено выше, эффект ФР является обратимым процессом, однако существует и так называемое лазерное повреж-

дение, наблюдаемое при больших интенсивностях света ($I \geq 10^9 \text{ Вт.см}^{-2}$), которое приводит к разрушению материала и не является обратимым процессом [47 - 49] . Эти процессы разрушения обычно осуществляются при импульсном воздействии лазерного излучения и сводятся к сильному нагреву материала и даже к плавлению. В процессах лазерного повреждения важную роль играет дефектная структура кристалла в его объеме и на поверхности [50 - 52] .

1.1.3. Электрооптический эффект в кристаллах

ниобата и танталата лития

В сегнетоэлектрической фазе кристаллы ниобата и танталата лития принадлежат к дитригонально пирамидальному типу симметрии (класс $3m$) [53] . Ниобат лития является оптически отрицательным ($n_e < n_o$), а танталат лития - оптически положительным кристаллом. В обоих материалах имеет место линейный электрооптический эффект (ЛЭЭ).

Электрическое поле может изменять как электронную, так и ионную подсистемы кристалла. Теоретический анализ этих сложных процессов поляризации кристаллической решетки провести достаточно трудно. В настоящее время такие расчеты согласуются с экспериментом только качественно [32, 42, 54] .

Так как ФР в LiNbO_3 и LiTaO_3 сводится к "внутреннему" электрооптическому эффекту, то рассмотрим феноменологическую теорию Поккелса [53] . Для описания ЛЭЭ применяется тензор диэлектрической проницаемости (тензор второго ранга). При этом оптическая индикатриса описывается уравнением

$$b_{11}x^2 + b_{22}y^2 + b_{33}z^2 + 2b_{23}yz + 2b_{13}xz + 2b_{12}xy = 1$$

где $b_{ij} = 1/\varepsilon_{ij} = 1/n_{ij}^2$, ε_{ij} — тензор диэлектрической проницаемости, n_{ij} — тензор показателя преломления. Электрооптический коэффициент r_{ijk} определяет изменение диэлектрической проницаемости среды в зависимости от величины приложенного электрического поля $\Delta b_{ij} = r_{ijk} E_k$ и сам является тензором третьего ранга. Поскольку тензор второго ранга симметричен, электрооптический тензор имеет не более 18 независимых элементов, при этом многие элементы в зависимости от симметрии кристалла, равны нулю [53].

В частности, у кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ имеется четыре независимых электрооптических коэффициента: r_{22} , r_{33} , r_{13} , r_{51} (здесь использована сокращенная форма записи индексов, см., например, [53, 55]).

При фоторефракции, когда индуцированное светом электрическое поле направлено вдоль оптической оси $\vec{c}$ (направление $[0 \ 0 \ 1]$), кристалл остается одноосным, а показатели преломления n_e и n_o изменяются следующим образом:

$$\begin{aligned} n_e' &= n_e - \frac{1}{2} n_e^3 r_{33} E_z \\ n_o' &= n_o - \frac{1}{2} n_o^3 r_{13} E_z \end{aligned}$$

Здесь E_z — напряженность электрического поля, направленного вдоль оси $\vec{c}$. Тогда изменение двулучепреломления при фоторефракции равно:

$$\Delta n = (n_e - n_o) - (n_e' - n_o')$$

или

$$\Delta n = \frac{1}{2} (n_e^3 r_{33} - n_o^3 r_{13}) E_z \quad (1.2)$$

Благодаря большой разнице между r_{33} и r_{13} (у $LiNbO_3$ $r_{33}/r_{13} \approx 3,2$, а у $LiTaO_3$ $r_{33}/r_{13} \approx 4,4$), изменение двулучепре-

ломления, наведенное электрическим полем ($\vec{E} \parallel \vec{e}$), получается приблизительно 60-70% от величины изменения n_e . Эта особенность позволяет легко следить за изменением электрического поля, возникающего при ФР, так как измерить $\delta\Delta n$ значительно легче, чем изменение n_e или n_o в отдельности. Измерение $\delta\Delta n$ в исследованиях ФР применяется и в настоящей работе.

Величина $\frac{1}{2}(n_e^3 n_{33} - n_o^3 n_{13})$ зависит как от температуры, так и от длины световой волны. В диапазоне температур 293 - 473 К полуволновое напряжение, зависящее от $\delta\Delta n$, линейно уменьшается с ростом температуры у LiNbO_3 примерно на 10%. С уменьшением длины волны света управляющие напряжения уменьшаются. Например, величина $\frac{1}{2}(n_e^3 n_{33} - n_o^3 n_{13})$ у LiNbO_3 при $\lambda = 0,63$ мкм равняется $5,4 \cdot 10^{-7}$ см/стат.В, а при $\lambda = 3,39$ мкм - $4,8 \cdot 10^{-7}$ см/стат.В [53]. Непосредственно квадратичные электрооптические коэффициенты не измерялись, однако оценки дают величины на 5-6 порядков ниже линейных коэффициентов, следовательно, даже в полях 100 кВ/см квадратичным эффектом можно пренебречь.

1.1.4. Проводимость кристаллов ниобата и танталата лития

Проводимость кристаллов ниобата и танталата лития представляет интерес как в области высоких температур, где осуществляется монодоменизация кристаллов, так и в области низких температур, где темновая проводимость определяет параметры фоторефракции. В качестве общего недостатка работ по электрической проводимости нужно отметить отсутствие четкого деления электронной и ионной проводимости, а также отсутствие

точных данных по электронной и дырочной проводимости. Решение этих проблем является весьма трудной задачей в виду недостаточной чистоты исходных материалов и достаточно сложного взаимного влияния примесей и стехиометрии на дефектную структуру кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$. Эти факторы затрудняют интерпретацию результатов по электрической проводимости, в том числе энергии активации.

Исследования при высоких температурах показали экспоненциальную зависимость темновой проводимости $\sigma_T = \sigma_0 \exp \frac{W}{kT}$ в ниобате лития от температуры, при этом около 873 К энергия активации (W) меняется [56-59]. Выше 873 К найдены следующие значения энергии активации 2,15 эВ [57], 2,12 эВ [56] и от 2,32 эВ до 3,07 эВ [58]. Авторы [56-59] отмечают явные признаки ионного механизма проводимости в $LiNbO_3$ при высоких температурах. Поэтому для исключения необратимых электролитических изменений кристаллов в исследованиях применяется переменный ток (20-50 Гц). Болман и др. [58] нашли, что энергия активации проводимости в $LiNbO_3$ зависит от избытка лития и от термической предистории образцов. Абсолютные значения σ_T колеблются в пределах $10^{-2} \div 10^{-4} \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$ при 1173 К.

Нагрев ниобата лития 5 часов при 1073 К в вакууме или в парах воды значительно увеличивает проводимость кристаллов и меняет температурную зависимость электропроводимости (рис. I.1) [58]. В неактивированных кристаллах $LiNbO_3$ со слабым поглощением света при $h\nu < E_g$ (E_g - ширина запрещенной зоны) темновая проводимость в температурном интервале 293-673 К может быть найдена с точностью до множителя 1,5 по зависимости [58]

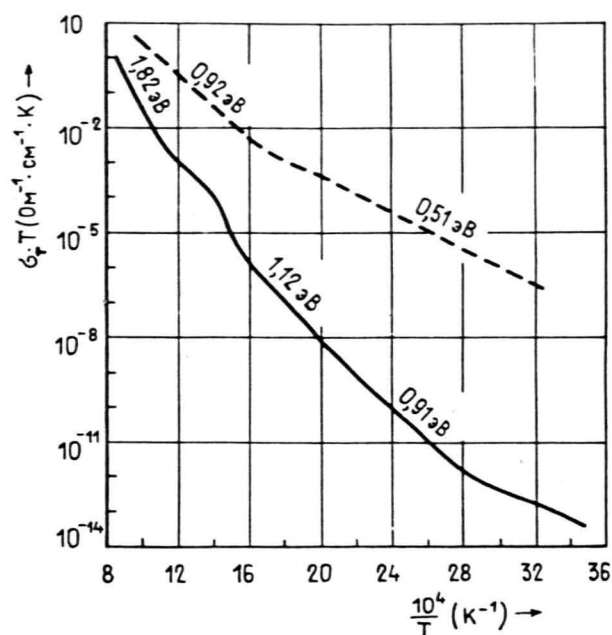


Рис. I.I. Температурная зависимость темновой проводимости ниобата лития до отжига в парах воды, свободных от кислорода, и после отжига. — отжиг 4 часа в кислороде при 1073 К, - - - отжиг 5 часов в парах воды при 1073 К [58] .

$$\sigma_T \cdot T = 4,5 \cdot 10^4 \exp\left(\frac{1,31 \text{ эВ}}{kT}\right), \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1} \cdot \text{К} \quad (1.3)$$

Из (1.3) при 300 К следует $\sigma_T = 1,5 \cdot 10^{-20} \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$. Измерение таких низких значений проводимости сталкивается со значительными экспериментальными трудностями, на что указано в работах [60-62]. В работе [62] измерена проводимость LiNbO_3 при 293 К и получены значения в диапазоне $10^{-15} - 2 \cdot 10^{-17} \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$, однако вычисленные по времени релаксации ФР проводимости на два порядка ниже ($10^{-17} - 10^{-19} \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$). Авторы отмечают возможное влияние поверхностного слоя, который имеет значительно более высокую проводимость, чем объем и определяет разброс значений, полученных разными методами. В температурном интервале 350-520 К проводимость LiNbO_3 находится в пределах $10^{-15} - 10^{-11} \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$ и часто эти температуры используются для измерения проводимости с последующей экстраполяцией к комнатным температурам. Такой способ использован в работе Блистанова и др. [61], где найдено, что проводимость экспоненциально зависит от температуры, а примеси (Mg , Cu , Mo , W , Mn) меняют энергию активации проводимости. Следует отметить, что указанный температурный интервал удобен еще и для исследований релаксации ФР, так как характерные времена релаксации невелики (минуты, секунды).

Интерес представляет зависимость проводимости от концентрации примеси железа в кристаллах, так как эта примесь дает наибольшее увеличение фоточувствительности кристаллов ниобата и танталата лития. Такого рода исследования проведены Барканом и др. [63-65], в которых обнаружено резкое увеличение проводимости и уменьшение энергии активации температурной зависимости

проводимости при увеличении концентрации железа в кристаллах ниобата лития. Изменение концентрации железа от 0,1 вес.% до 0,18 вес.% меняет проводимость кристалла при 293 К на пять порядков, от $10^{-19} \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$ (проводимость получена экстраполяцией данных работы [64]) до $10^{-14} \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$ соответственно. Авторы [64] объясняют такую зависимость проводимости от концентрации примеси переходом Мотта. Однако отмечается [65], что при более детальном рассмотрении такого перехода выявляются узкие места модели, например, оценена энергия прыжка порядка 0,6 эв, что гораздо больше энергии фонона Дебая. В этой связи обсуждаются многофононные процессы и разброс энергетических уровней, как возможное объяснение большой энергии прыжка.

При температурах выше 973 К проводимость ниобата лития не зависит от введенной примеси (Fe до 1 вес.%), так как во всех образцах как с примесью железа, так и в чистых, проводимость одинакова [65].

На основе исследований проводимости на переменном токе ($8 \cdot 10^2 - 10^7$ Гц) в диапазоне температур 373–973 К Глушкова и др. [66] предлагает поляронный механизм проводимости. В работе [36] используется модель полярона малого радиуса для объяснения процессов переноса зарядов в ниобате лития с примесью железа. Простой расчет дает хорошее согласие с экспериментальными данными по энергии активации проводимости и спектральным характеристикам Fe^{2+} и Fe^{3+} центров, предполагаемых в качестве доноров и акцепторов электронов [36].

Ниже 873 К наряду с электронным механизмом проводимости остается и ионный механизм. Об этом свидетельствуют работы по фиксации голограмм [67–69] и исследования стабильности кристаллов в электрическом поле [70]. Дислокации и другие дефекты

кристаллической решетки увеличивают проводимость [71] .

Согласно [72] освещение кристаллов ниобата лития светом создает дополнительную проводимость к темновой проводимости. Эта дополнительная проводимость наблюдается некоторое время после выключения освещения. Проводимость определялась голографическим методом по скорости релаксации голограммы в темноте

$$\sqrt{\eta} = \sqrt{\eta_0} e^{-\frac{t}{\tau}}, \quad (1.4)$$

где η_0, η - дифракционные эффективности, исходная и после истечения времени t соответственно; $\tau = \epsilon \epsilon_0 / \sigma$ - скорость релаксации, ϵ, ϵ_0 - диэлектрические проницаемости.

Исследования релаксации голограмм, проведенные при температуре 345 К, показали, что τ в начале релаксации увеличивается, т.е. не является постоянной. Авторы [72] предлагают приближенно темновую проводимость описывать следующим образом

$$\sigma = \sigma_T + \sigma_1 e^{-t/\tau_1},$$

где σ_T - темновая проводимость, $\sigma_1 e^{-t/\tau_1}$ - дополнительная проводимость, исчезающая после выключения освещения со скоростью

τ_1 . Величина τ_1 имеет порядок $10^3 - 10^4$ с (345 К). Исследования проводились на кристаллах с концентрациями примеси железа 0,1 - 0,05 %. Прямой связи между дополнительной проводимостью и концентрацией примеси не было найдено, не удалось установить также пороговую интенсивность света, при которой возникает σ_1 . Такой же эффект был обнаружен и в кристаллах $Ba_x Sr_{1-x} NbO_3$ [73] .

Проводимость танталата лития исследована гораздо меньше, чем проводимость ниобата лития. Можно предположить, что механизм проводимости танталата лития, благодаря аналогичной ниоба-

ту лития кристаллической структуре, является близким механизму проводимости ниобата лития. Из измерений времени релаксации [74] следует, что проводимость танталата лития примерно на порядок ниже, чем в ниобате лития. Найдено [74], что отношение Li/Ta в кристаллах танталата лития заметно меняет проводимость и энергию активации (1,10–1,38 эВ) ее температурной зависимости. Благодаря низкой проводимости танталата лития время сохранения голограмм при 293 К оценивается приблизительно в 10 лет [75].

1.2. Факторы, влияющие на фоторефракцию в кристаллах ниобата и танталата лития

1.2.1. Влияние состава кристаллов на фоторефракцию

Как было отмечено (раздел 1.1), ниобат и танталат лития можно выращивать с различной стехиометрией в довольно широких пределах соотношения концентрации атомов Li/Nb и Li/Ta . На некоторые физические свойства этих кристаллов (температура Кюри, генерация второй гармоники, ширины линий комбинационного рассеяния света, полуширину пика в спектре ЯМР и др.) состав оказывает заметное воздействие [32, 42, 158, 159]. Зависимость этих физических свойств от состава кристаллов может использоваться при сравнении или определении стехиометрии. Следует отметить, что неконтролируемые примеси в исходном материале могут привести к заметному изменению стехиометрии [43].

Изменение состава в ниобате и танталате лития не приводит к компенсации заряда недостающих ионов Li за счет свободных носителей или простых центров захвата электронов. Одновременное

увеличение плотности, и объема элементарной ячейки в области недостатка Li_2O дает основание предположить, что по меньшей мере часть избыточных ионов Nb или Ta располагается в дополнительных положениях элементарной ячейки [32] .

Ангерт и др. [34] исследовали влияние стехиометрии на ФР и показали, что скорость изменения $\delta\Delta n$ и величина стационарного значения ($\delta\Delta n_{ст}$) растет с увеличением отношения атомов Li/Nb . Подобные результаты получены также Зейналли и др. [35] на чистых образцах ниобата лития, однако введение примеси железа в кристаллы с разной стехиометрией приводит к тому, что чувствительней оказываются образцы с меньшим отношением атомов Li/Nb (сравнивается ниобат лития с одинаковой концентрацией примеси железа 0,02 вес.%). Объясняя полученные результаты, авторы предположили, что центрами ФР являются кислородные вакансии, захватившие один или два электрона. Следует добавить, что в такого рода экспериментах, которые представляют несомненный интерес, необходимы достаточно точные данные о составе кристаллов и концентрации примеси в кристаллах, так как еще в 1971 году Петерсон и др. [14] показали, что чувствительность "чистых" (т.е. неактивированных) кристаллов зависит от следовых концентраций железа (см. также [76]). В настоящее время приходится констатировать, что влияние состава на ФР изучено ————— слабо.

1.2.2. Влияние примесей на фоторефракцию в ниобате и танталате лития

Одним из центральных вопросов, связанных с ФР, является выяснение влияния примесей на это явление. Результаты спектральных исследований показывают, что ФР создается светом как из области собственного, так и примесного поглощения [1, 77-81] .

Петерсон и др. [14, 82] при помощи ЭПР обнаружили во всех номинально чистых образцах ниобата лития примесь железа. Концентрация примеси коррелировала с фоточувствительностью образцов. В этих работах была показана возможность управления чувствительностью фоторефракции при помощи введения примеси железа или очистки кристаллов от этой примеси. Был предложен механизм, в котором предполагалось, что ионы Fe^{2+} при воздействии света являются донорами электронов, а ионы Fe^{3+} - центрами захвата электронов. Введение некоторых других примесей (Cu, Mn, Rh, U, Ni, Co, Cr, V) в кристаллы $LiNbO_3$, $LiTaO_3$ также увеличивало их светочувствительность [6, 81-87]. Однако, примесь Fe оказалась в этом плане самой эффективной. Примеси кобальта, хрома, никеля и ванадия слабо влияют на ФР. Тсуя [83, 84] показал, что примеси марганца и ванадия в кристаллах танталата лития в концентрациях 10^{-1} моль% и выше снижают фоточувствительность кристаллов, однако введение этих примесей в ниобате лития не дает такого эффекта [82]. Эхонг Ги-гуо и др. [88] отмечают, что введение MgO (1 - 10%) в количестве выше 5% снижает чувствительность ФР в 100 раз, при этом фотопроводимость увеличивается слабо. Повышение устойчивости кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ к свету введением специальных примесей пока мало изучено [76].

Нагреванием кристаллов ниобата и танталата лития в атмосферах кислорода или гелия можно менять соотношение концентрации двухвалентного и трехвалентного железа Fe^{2+}/Fe^{3+} в образцах в довольно широких пределах (от 0,05 в атмосфере кислорода до 0,95 в атмосфере гелия) [33, 75, 89-91]. Бухараев и др. [89] нагревали кристаллы $LiNbO_3-Fe$ в течение 5 часов при $700^{\circ}C$, а соот-

ношение Fe^{2+}/Fe^{3+} контролировалось при помощи ЭПР и акустического ЭПР, а также по спектрам поглощения. В работах [37, 75, 81] использовались более высокие температуры 900-1100°C и времена нагрева 10-20 часов. Описан метод изменения соотношения Fe^{2+}/Fe^{3+} путем нагрева кристаллов в контакте с соединениями лития (Li_2CO_3 , Li_2SiO_3 , LiF и др.) при температурах 500 - 600°C [91].

Руководствуясь максимальным изменением двулучепреломления и чувствительностью ФР можно определить оптимальное соотношение концентрации ионов Fe^{2+}/Fe^{3+} , которое составляет 0,25 - 0,4. При таком соотношении концентрации ионов Fe^{2+}/Fe^{3+} чувствительность ФР растет с увеличением общей концентрации примеси железа и насыщается при 0,1 ат.% Fe [33].

Кроме достаточно высокой чувствительности ФР к оптическим регистрирующим материалам предъявляются и другие требования, например, большое или наоборот, малое время сохранения записанной информации, хорошая фиксация записи и др. (см. раздел 1.2.4). Эти требования в какой-то степени могут быть удовлетворены с помощью изменения концентрации примеси железа, и таким образом оптимальная концентрация Fe, например, для записи голограмм различается для каждого конкретного случая.

В кристаллах ниобата лития ионы Fe^{3+} образуют уровни захвата, которые находятся на 0,6 эВ ниже дна зоны проводимости, а уровни Fe^{2+} - на 2,7 эВ. Более глубокий уровень 3,2 эВ может быть образован при наличии комплекса Fe^{2+} -кислородная вакансия (O_v^{-}) [36, 37]. Предложенная в работе [36] зонная схема с такими глубокими электронными центрами захвата (энергия расположения уровня $2,7 \div 3,2$ эВ, а ширина запрещенной зоны $E_g \approx 3,7$ эВ) требует дополнительных исследований и теоретическо-

го обоснования.

Механизм ФР, предложенный Глассом [2], предполагает анизотропию микропотенциала вблизи примесных центров железа (раздел I.3.3), и с этой точки зрения комплекс $Fe^{2+}-O_v^{--}$ представляет интерес как возможный донорный центр ФР [92]. Исследования структуры Fe^{2+} ионов с помощью эффекта Мессбауэра не подтвердили существование таких комплексов [37], авторы допускают наличие лишь относительно небольшого количества $Fe^{2+}-O_v^{--}$.

Определение концентрации ионов Fe^{2+} позволила определить силу осциллятора двух полос с максимумами поглощения при 1,1 эВ и 2,6 эВ $f_{1,1} = 4 \cdot 10^{-4}$ и $f_{2,6} = 1,3 \cdot 10^{-2}$ (поляризация света перпендикулярна оптической оси кристалла). Такого же порядка величина силы осциллятора Fe^{2+} центров получена и в работе [91] ($f_{2,7} = 5 \cdot 10^{-2}$; измерения проводились на длине волны 450 нм).

Примесь железа в кристаллах $LiTaO_3$ дает полосы поглощения, подобные $LiNbO_3-Fe$ [75]. Локализованные $d-d$ переходы на Fe^{2+} ионе ответственны за максимум поглощения около 1,1 эВ, спин-запрещенные $d-d$ переходы на ионах Fe^{3+} - за максимумы при 2,6 и 2,9 эВ, а интервалентный переход $Fe^{2+}-Ta^{5+}$ - за максимум при 3 эВ. Поглощение с максимумом около 4 эВ связывается с процессом переноса заряда от π -орбиталей кислорода к ионам Fe^{3+} . Приводятся силы осцилляторов указанных переходов в $LiTaO_3-Fe$: $f_{1,1} = 5 \cdot 10^{-4}$; $f_3 = 10^{-2}$; $f_4 = 5 \cdot 10^{-2}$ (поляризация света перпендикулярна оптической оси) [75].

Введение в кристаллы более одной легирующей примеси приводит к фотохромному эффекту. В работах [93, 94] исследовался $LiNbO_3$ с добавкой Fe и Mn , а также с другими парами примесей. Такие кристаллы окрашиваются при облучении ультрафио-

летовым светом, а видимый свет (энергия квантов света 2,6 эВ, в полосе поглощения Fe^{2+}) просветляет образцы.

Легирование $LiNbO_3$ вторым примесным элементом ухудшает голографические параметры (чувствительность, максимальную дифракционную эффективность), однако увеличивает устойчивость голографической записи к нагреву (энергия активации 1,45 эВ) [93], что должно увеличивать время сохранения записанной информации.

Некоторые примеси (Cr , Co) были использованы для записи голограмм при двухфотонном процессе поглощения света [95-97]. Такой механизм записи возможен благодаря существованию возбужденного состояния примесного иона с достаточно большим временем жизни. На первой стадии светом с соответствующей энергией фотона возбуждается переход электрона на этот уровень, а потом светом с другой длиной волны с возбужденного состояния электрон перебрасывается в зону проводимости. Интенсивный свет (10^9 Вт/см² или больше) создает также нелинейное поглощение и при температуре 20 К центры окраски в номинально чистых кристаллах, которые связываются с локализацией дырок вблизи ионов O^- и соответственно электронов вблизи Nb^{4+} [97, 98].

1.2.3. Действие внешнего электрического поля

Уже в работах [1, 99] сообщалось, что в ниобате калия (KTN) ФР появляется только в присутствии внешнего электрического поля. Такой способ создания ФР позднее использовался для записи голограмм (механизм фотопроводимости) [100]. В работах [12, 103-107] была показана возможность управления внешним электрическим полем E_g процессов ФР в кристаллах ниобата и танталата лития (см. также наши работы [101, 102] и раздел 4). В зависимости от направления E_g относительно вектора спонтанной

поляризации величина δn_{CT} и чувствительность записи увеличивается или уменьшается, выбором определенной величины и направления E_B ФР можно компенсировать. Величины компенсирующих полей (E_K) зависят от интенсивности света, температуры кристалла и введенных примесей. При комнатных температурах и интенсивностях света $I = 10 \text{ Вт/см}^2$ в номинально чистых кристаллах ниобата и танталата лития E_K имеют величины в пределах 5 - 20 кВ/см, а легирование (Fe , Cu) увеличивает E_K до 50 - 100 кВ/см. В последнем случае значения E_K находятся обычно при помощи экстраполяции, так как они превышают величину поля, при которой пробивается воздух.

Из теории объемного фотовольтаического эффекта [2] вытекает существование E_K , а также зависимость этого поля от интенсивности света (см. раздел I.3.3). Выражение для стационарного поля, которое создается при облучении кристалла светом с интенсивностью I в присутствии внешнего поля E_B имеет вид

$$E_{CT} = \frac{K \propto I}{\sigma_T + \sigma_F} - E_B \quad (I.5)$$

Если E_B выбрать таким, что $E_B = \frac{K \propto I}{\sigma_T + \sigma_F}$, то $E_{CT} = 0$ и ФР не наблюдается, а $E_B = E_K$.

Голографические исследования на кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$, находящихся во внешнем электрическом поле, показали, что при E_K запись полностью не исчезает [76, 105, 106, 108]. Предполагается, что в этом случае запись обусловлена диффузионным механизмом (раздел I.3.4). Можно было бы ожидать, что электрическое поле будет влиять непосредственно на анизотропные центры ФР и изменит константу Гласса $K = f(E)$. Однако обычно E_B и E_{CT} значительно меньше внутрикристаллических полей и K от поля не зависит [32].

Благодаря высоким полям насыщения, которые имеют место в кристаллах ниобата и танталата лития с примесью Fe , внешнее поле, достижимое в эксперименте, не способно увеличить светочувствительность, однако в кристаллах с большими дрейфовыми длинами пробега носителей заряда фотопроводимость достаточно высока, а величины электрических полей, наведенные освещением, низки и E_g существенно влияет на процесс ФР. Отметим, что E_g в материалах с невысокой температурой Кюри используется для фиксации и стирания записи (см. обзоры [6, 7]).

Интересно также действие электрического поля на кристаллы в результате которого меняется их светостойкость. В работе [77] описан способ уменьшения восприимчивости к возникновению ФР. Методика включает отжиг кристаллов в электрическом поле величиной 250 В/см при температуре 700°C в течении 30 минут с последующим охлаждением до комнатной температуры в отсутствии электрического поля со скоростью 100 град/ч. Более эффективно такая обработка влияет на $LiTaO_3$, чем на $LiNbO_3$. Тсуя [84] показал, что после отжига в электрическом поле кристаллов $LiTaO_3$ у положительного электрода кристалла чувствительность к свету заметно ниже, чем у отрицательного. Эти результаты объясняются разным соотношением Fe^{2+}/Fe^{3+} около электродов, так как из ЭПР спектров найдено, что возле положительного электрода ионов Fe^{2+} примерно на порядок меньше, чем у отрицательного, при том установлено, что миграция ионов Fe не происходит. Автор [84] предполагает, что ионы Fe^{3+} восстанавливаются благодаря миграции кислородных вакансий, которые имеют высокую подвижность в кристаллах $LiTaO_3$.

1.2.4. Температурная зависимость ФР и фиксации записи

Экспериментальные исследования зависимости стационарных величин изменений двулучепреломления ($\delta n_{ст}$) при постоянной интенсивности света показали убывание $\delta n_{ст}$ с ростом температуры [34, 110]. Голографическая чувствительность при импульсном облучении остается практически независимой от температуры (293–573 К) [109]. Как уже рассматривалось выше (раздел 1.1.3), характерные времена (τ) релаксации ФР определяются темновой проводимостью кристаллов и зависят от температуры с энергией активации около 1,0 и 1,3 эВ для кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ соответственно.

В работах [34, 110] рассмотрено, как температура кристалла влияет на процесс ФР, и показано, что с ростом температуры уменьшаются стационарные значения (ФР ($\delta n_{ст}$)) и времена ее возникновения (τ_ϕ). Небольшие концентрации примеси железа (ниже 0,1 вес.%) заметно влияют на температурную зависимость $\delta n_{ст}$. В работе [110] исследовался $LiNbO_3$ с примесью железа, и при высоких температурах получена энергия активации около 1,1 эВ (нами рассчитанная величина энергии активации по приведенной на рис. 5 в работе [110] зависимости $\delta n_{ст}$ от температуры оказалась около 0,85 эВ) (см. также работу [26]). В номинально чистом ниобате лития $\delta n_{ст} = f(T)$ имеет энергию активации 0,3 ÷ 0,06 эВ [34].

Величина $\delta n_{ст}$ при постоянной интенсивности света в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ может быть определена по выражениям (1.14) и (1.1), откуда находим:

$$\delta n_{ст} = \frac{m K \alpha I}{G} \quad (1.5)$$

где $m = 0,5(n_e^3 n_{33} - n_o^3 n_{13})$, K - константа фотовольтаического эффекта (константа Гласса), α - коэффициент поглощения, а σ в освещенной области складывается из темновой σ_T и фотопроводимости σ_ϕ . Оценим вклад каждого параметра в $\delta n_{CT} = f(T)$. Электрооптический множитель m слабо зависит от температуры (раздел I.1.2), тоже самое можно сказать и о коэффициенте α если длина волны падающего света не соответствует краю фундаментального поглощения, что и имело место в рассматриваемых экспериментах. В работе [9] показано, что фотовольтаический ток ($j = K\alpha I$) в $LiNbO_3$ падает по степенному закону ($\sim T^{-3}$) с ростом температуры в интервале температур 100 - 200 К. А в работе [24] было найдено, что при температурах 300 - 500 К в кристаллах $LiNbO_3 - Fe$ 0,01 (моль % Fe) j растет экспоненциально, при этом повышение температуры от 293 до 450 К увеличивает ток в два раза (от $5 \cdot 10^{-10}$ до 10^{-9} А.см⁻²). Такой же рост наблюдается и в $LiTaO_3$ при повышении температуры от комнатной до 523 К [75]. Фотопроводимость в $LiNbO_3 - Fe$ с ростом температуры растет экспоненциально с энергией активации 0,16 эВ [24]. В номинально чистых образцах эта величина, определенная по кинетике экранировки внешнего электрического поля (E_g), ($E_g \perp \vec{C}$), оказалось $0,2 \pm 0,02$ эВ [146].

Температурные зависимости σ_T , σ_ϕ и j ($LiNbO_3 - Fe$ 0,01 моль %) представлены на рис. I.2 [24]. Значения этих параметров при температуре T можно найти по следующим эмпирическим выражением:

$$\sigma_T = 0,179 \exp(-12632 T^{-1}), \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1} \quad (\text{I.6})$$

$$\sigma_\phi = 4,25 \cdot 10^{-11} \exp(-1816 T^{-1}), \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1} \quad (\text{I.7})$$

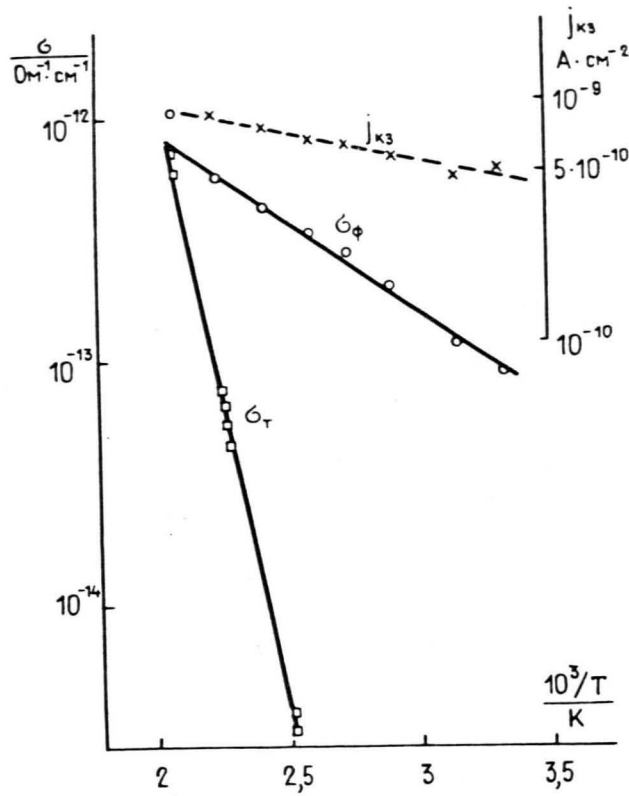


Рис. 1.2. Температурная зависимость темновой проводимости σ_T , фотопроводимости σ_ϕ и фототока короткого замыкания j_{k3} в кристалле $LiNbO_3-Fe$ 0,01 моль при интенсивности $0,48 \text{ Вт.см}^{-2}$, длины волны 488 нм и параллельной с оптической оси кристалла поляризацией света [24] .

$$j = 2,9 \cdot 10^{-9} \exp(-535,3 T^{-1}) \text{ А} \cdot \text{см}^{-2} \quad (1.8)$$

Из выражений (1.5) и (1.6 - 1.8) получаем:

$$\delta \Delta n_{CT} = [A \exp(a T^{-1}) + B \exp(b T^{-1})]^{-1} \quad (1.9)$$

где $a = \frac{W_T - W_j}{K}$; $b = \frac{W_\phi - W_j}{K}$; W_T , W_ϕ и W_j - энергии активации темновой проводимости, фотопроводимости и фотовольтаического тока, соответственно; K - постоянная Больцмана; A , B - константы. Зависимость $\delta \Delta n_{CT}(T)$, вычисленная по данным [24] (рис. 1.2) при помощи (1.9) ($m = 1,1 \cdot 10^{-8}$ см/В), представлена на рис. 1.3 и качественно совпадает с экспериментально измеренными в работе [110] и в нашей работе [26] (см. раздел 5). Рассчитанная величина $\delta \Delta n_{CT}$ при помощи (1.9) и данных [24] численно оказалась на порядок ниже, чем наблюдаемые $\delta \Delta n_{CT}$ в экспериментах [26, 110]. Хорошее совпадение с экспериментальными данными получается, если взять фотопроводимость на 1,5 порядка ниже, чем в [24]. Так как величины ϵ_T и ϵ_ϕ зависят от термической обработки и состава кристаллов (разделы 1.2.1; 1.2.2), то, по-видимому, различие между теорией и экспериментом только количественное и (1.9) описывает температурную зависимость $\delta \Delta n_{CT}$ в интервале 300-500 К.

Литературные данные по исследованию ФР в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ ниже комнатных температур до начала наших исследований отсутствовали. Нами найдено [26] (раздел 5), что при понижении температуры кристаллов $LiNbO_3$ $\delta \Delta n_{CT}$ растет, но около 200 К наступает насыщение и дальнейшее охлаждение увеличивает $\delta \Delta n_{CT}$ слабо. Аналогичные результаты нами получены и на $LiTaO_3$ [III], в которых $\delta \Delta n_{CT}$ перестает расти ниже 230 К. Следует отметить, что около 200 К имеется максимум термостимулированной люминес-

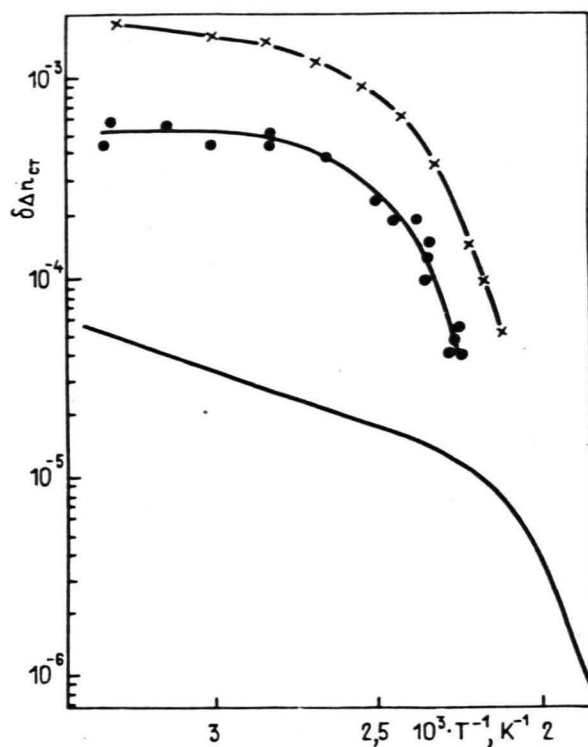


Рис. I.3. Температурная зависимость стационарных величин фоторефракции $\delta n_{ст}$ в кристаллах $LiNbO_3 - Fe$, измеренные разными авторами. ●—● авторами работы [110], интенсивность света $3,5 \text{ Вт.см}^{-2}$, длина волны 632,8 нм; ——— рассчитана по данным работы [24] при помощи (I.9), концентрация Fe 0,01 моль %, интенсивность света $0,48 \text{ Вт.см}^{-2}$, длина волны 488 нм; x—x наши результаты, $LiNbO_3 - Fe$ (0,1 вес.%), $\lambda = 496,5 \text{ нм}$, $I = 0,1 \text{ Вт.см}^{-2}$.

облученных
центров гамма-излучением кристаллов $LiNbO_3$ [38] и не исключено, что эти мелкие центры, которые разрушаются при 200 К, играют роль в процессах фоторефракции.

Нагрев кристаллов ниобата и танталата лития используется как для стирания, так и для фиксации записанной информации. Амодей и Стейблер [112, 113] нашли, что при выдерживании $LiNbO_3$ с записанной голограммой при 373 К в течении нескольких минут дифракция почти исчезает, но после охлаждения кристалла до комнатной температуры неравномерное освещение заново восстанавливает голограмму, которая уже не стирается при длительном освещении. Авторы объясняют это явление на основе представлений о возможности ионной миграции при повышении температуры в $LiNbO_3$. При записи голограмм в $LiNbO_3$, $LiTaO_3$ интерференционная картина световых пучков вызывает появление в кристалле соответствующего распределения плотности захваченных на акцепторах электронов (см. раздел I.3). При 373 К электронное распределение довольно стабильно, но активируются ионные дефекты (природа не известна), которые, мигрируя, компенсируют поля, созданные распределением электронов. При комнатной температуре распределение ионных дефектов заморожено, а захваченные на ловушках электроны при равномерном освещении освобождаются. Таким образом, в кристалле остается голографическая решетка, созданная распределением ионных дефектов вместо электронных. Такая голограмма в процессе считывания имеет стационарную дифракционную эффективность,

Детальный элементарный механизм термической фиксации голографической записи в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ в настоящее время не установлен. Так, например, ионы Si в работе [67]

рассматриваются как активные ионы, мигрирующие в процессе фиксации, однако в работе [68] исследовалась кинетика фиксации в $LiNbO_3$ с добавкой 0,03 моль % Fe_2O_3 и 0,03 моль % SiO и механизм фиксации голограмм, в основе которого лежит миграция ионов Si , оценивается как маловероятный. Такой же вывод в работе [68] сделан относительно ионов OH^- , Li^+ и кислородных вакансий. Меиер и др. [68] рассматривают также механизм фиксации голограмм, в основе которого лежит переполаризация сегнетоэлектрического кристалла. Такой механизм был предложен в работе [39], однако из анализа полученных экспериментальных данных авторы [68] исключают переполаризационный механизм фиксации голограмм в $LiNbO_3$.

Согласно измерениям Куликовы и сотр. [69; II4], эффективность фиксации зависит от концентрации примеси железа (хорошие результаты получаются с концентрациями ниже 0,03 вес.% Fe) и периода записанной голограммы. В лучших случаях фиксированная голограмма обладала половиной начальной дифракционной эффективности.

Следует отметить, что фиксация записи не устраняет светочувствительность самого кристалла. Поэтому в процессе считывания фиксированных голограмм происходит индуцированное светом искажение информации и ухудшение отношения сигнал/шум [II5-II7].

1.2.5. Фотоиндуцированный электрический пробой

Уже в первой работе [I] по фоторефракции упомянуто о пульсациях проходящего света в некоторых образцах $LiNbO_3$. Гласс и др. [2] сообщали об электрическом пробое, который наблюдается при измерениях фотовольтаического тока и голографических исследованиях, где регистрировалось скачкообразное изменение дифрак-

ционной эффективности при малых пространственных частотах и больших интенсивностях света. Однако в работе [2] детальное описание этого явления отсутствует. В [39, II8] скачки при измерении ФР связываются с эффектом Баркгаузена, который проявляется при комнатной температуре благодаря большим внутренним электрическим полям, возникающим при ФР. Как известно, механизм скачков Баркгаузена основывается на переполаризации сегнетоэлектрика, и если он имеет место в $LiNbO_3-Fe$, то можно надеяться получить большие времена сохранения записи (фиксация записи), о чем и оговорено в работе [39]. Абрамов и Воронов [II9] уточняют, что поле, созданное светом, параллельно направлению спонтанной поляризации (P_S) кристаллов $LiNbO_3$, и переполаризация в принципе не может иметь место в центре освещенной области. Остаются края светового пятна, где поле антипараллельно P_S , но там величина поля ниже, кроме того, по нашим результатам, пробой в основном проявляется в центральной части освещенного пятна [I20]. В работе [40] было показано, что пробой осуществляется на поверхности кристалла $LiNbO_3$ и для его устранения достаточно поверхность покрыть диэлектриком с диэлектрической проницаемостью $\epsilon \simeq 30$. Наши экспериментальные результаты также свидетельствуют о поверхностном механизме пробоя в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ [I20] (см. раздел 4.2).

1.2.6. Усиление рассеяния когерентного света

После открытия фоторефракции в $LiNbO_3$ и других сегнетоэлектриках, в кристаллах $LiNbO_3-Fe$ было обнаружено усиление рассеяния когерентного света, сопровождающее явление фоторефракции [I, 27, I65-I67].

Особенности этого явления, такие как квадратичная зависимость интенсивности рассеянного света от времени в начале облучения, угловая селективность созданного усиленного рассеяния и др. объясняются появлением дифракционной решетки в кристалле во время его облучения светом [165]. Возникновение такой пространственной решетки авторы работ [27, 166] объясняют интерференцией падающего света с рассеянным на неоднородностях кристалла светом и явлением фоторефракции. В оптических регистрирующих материалах этот эффект рассеяния является нежелательным, так как повышает уровень шума [165, 167].

1.3. Механизм фоторефракции в кристаллах

$LiNbO_3$ и $LiTaO_3$

В таблице ^{1.1} приведены основные механизмы предложенные для объяснения ФР.

Впервые электрооптическая природа фоторефракции была показана Ф.С.Ченом [12]. Эта работа играла весьма существенную роль в дальнейшем развитии экспериментов и моделей ФР. Полученные экспериментальные результаты по исследованию ФР в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ в настоящее время лучше всего согласуются с фотоволтаическим механизмом [2], а также диффузионным механизмом [18, 19].

Ниже рассмотрены некоторые наиболее важные механизмы ФР.

1.3.1. Механизм Чена

Уже в работе Ашкина и др. [1] предполагалось, что ФР может быть связано с электрооптическим эффектом. В работах Чена [5, 12, 99] эта идея была развита, и многие экспериментальные факты получили хорошее объяснение.

Таблица I.I

Развитие физических представлений о фоторефракции
в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3

Автор, год	Результат	Предложенная модель	Литература
А.Ашкин и сотр., 1966	Видимый свет создает изменение показателей преломления (Δn) кристаллов LiNbO_3 и др. Величина Δn около $2 \cdot 10^{-4}$, при интенсивностях света около 1 Вт/см^2 , время релаксации несколько минут, созданное Δn стирается при нагреве кристаллов до 450 К , $\Delta n_e > \Delta n_o$ и градиент изменений показателей выше вдоль оптической оси кристаллов.	Объяснение явления не приводится, отмечается его возможная связь с фотопереносом и электрооптическим эффектом или с изменением поляризуемости элементарной ячейки кристалла при фотоионизации центров окраски.	[1]
Ф.С.Чен, 1969	Пространственное распределение изменений двулучепреломления $\delta \Delta n = \delta(n_e - n_o)$ в LiNbO_3 и LiTaO_3 имеет не локальный характер: в любой момент воздействия света с интенсивностью $I(x, y)$ $\delta \Delta n(x, y) \neq a I(x, y)$, где a - константа, x, y - координаты освещенной области кристалла. Вдоль оптической оси кристаллов распределение $\delta \Delta n$ в центре освещенной области имеет противоположный знак по сравнению со знаком	Фоторефракция является результатом фотопереноса электрических зарядов и электрооптического эффекта. В кристалле имеются донорные центры, из которых свет освобождает носители заряда. Освобожденные носители перемещаются в существующем до освещения внутренним электрическом поле и образуют объемный электрический заряд, уменьшающий начальное поле.	[12]

Автор, год	Результат	Предложенная модель	Литература
	δn на его краях. На величину дифракционной эффективности (η) элементарных голограмм в $LiNbO_3$ влияет величина угла между направлением штрихов голограммы и оптической осью при записи и направление поляризации света при считывании голограмм. В $LiNbO_3$ фототок возникает без внешнего источника напряжения.		
В.Д.Джонстон, 1970	Теоретическое рассмотрение	Фоторефракция является результатом изменения поляризации центров светочувствительности после воздействия света на кристалл.	[13]
Дж.Дж.Амодей, Д.Л.Стеблер, 1971	Обнаружено явление перекачки энергии между предметным и опорным пучками в объемной светочувствительной среде — $LiNbO_3$. Полученный результат объясняется на основе диффузионного механизма переноса зарядов.	Предложены диффузионный и дрейфовый компоненты фотопереноса.	[18,19]
А.М.Гласс, Д.фон дер Линде, Т.Негран, 1974	Экспериментально обнаружен фотоволтаический эффект в кристаллах $LiNbO_3-Fe$.	Фоторефракция связана с фотоволтаическим эффектом. Причина разделения носителей заряда — асимметрия потенциала центра поглощения.	[2]

Автор, год	Результат	Предложенная модель	Литература
А.П.Леванюк, В.В.Осипов, 1975	Теоретическое рассмотрение	Показатель преломления кристалла изменяется благодаря возбуждению или ионизации светом примесных центров	I6, I7
В.И.Белиничер и др., 1976	Теоретическое рассмотрение	Асимметрия рассеяния электронов на примесях и фононах приводит к фотовольтаическому току	28 - 30
А.В.Гулбис, Н.Н.Кристофель, 1979	Теоретическое рассмотрение	В рамках выбронной теории фоторефракция объясняется естественным образом и не требует существования в кристалле асимметрии возбуждения, рассеяния и рекомбинации	I37, I38

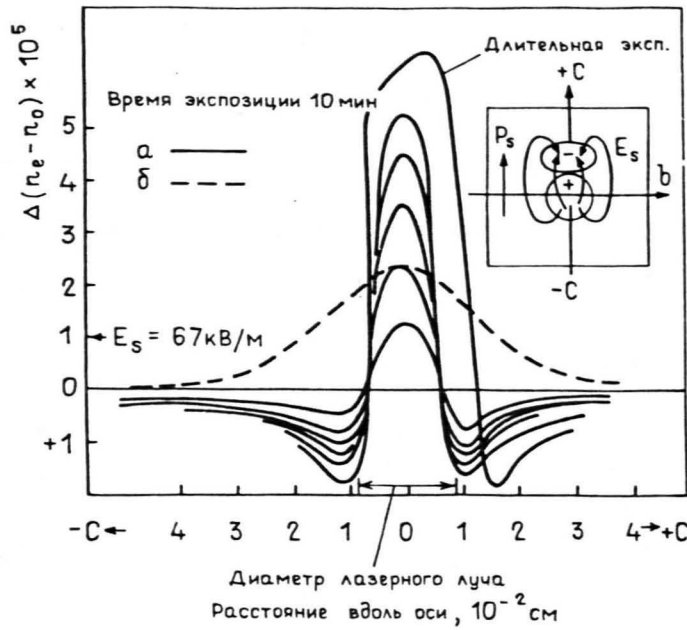


Рис. I.4. Распределение δn для различных экспозиций при воздействии лазерного луча на LiTaO_3 : - - - распределение δn в направлении оси $\vec{b}$; — в направлении оси $\vec{c}$; $2R$ - диаметр лазерного луча [12] .

Модель Чена [12] исходит из предположения, что в кристалле существует внутреннее электрическое поле E_i , направленное противоположно вектору спонтанной поляризации P_S . Предполагается также, что в кристалле имеются заполненные и пустые электронные центры. Электроны, выброшенные в зону проводимости при фотоионизации светом донорных центров, дрейфуют под действием поля E_i и захватываются ловушками на границе освещенной области. Поле, созданное захваченными электронами на одной стороне освещенной области и положительно ионизованными центрами на другой стороне, вызывает изменение показателей преломления из-за электрооптического эффекта. После выключения освещения при комнатной температуре разделенные заряды сразу не могут рекомбинировать, так как термическое возбуждение недостаточно для ионизации центров, захвативших электроны.

Поляризационно-оптическим методом Чен исследовал изменение двулучепреломления ($\delta\Delta n$) в окрестности воздействия интенсивного светового луча лазера (рис. I.4). Для измерений использовался ослабленный луч с меньшим диаметром. Эксперимент показал анизотропию изменений $\delta\Delta n$. Вдоль оптической оси $\vec{c}$ наблюдалось изменение знака $\delta\Delta n$ вблизи краев освещенной области, а вдоль перпендикулярного направления $\delta\Delta n$ оставалось отрицательным. Полученное распределение $\delta\Delta n$ хорошо согласовывалось с выше описанным механизмом. Детальное представление о распределении электрических зарядов и $\delta\Delta n$ при облучении кристалла лазерным лучом с гауссовым распределением интенсивности света получено при расчете ФР с феноменологических позиций [121]. Электрооптическая природа явления была показана и в голографических исследованиях. После записи голографической решетки считывание

производилось светом с различной поляризацией: как параллельной оси $\vec{C}$, так и перпендикулярной. Отношение полученных дифракционных эффективностей находилось в согласии с электрооптическими коэффициентами ниобата и танталата лития [12].

Чен исследовал зависимость дифракционной эффективности от ориентации решетки элементарной голограммы относительно оптической оси кристалла. Если бы перенос заряда происходил по направлению оптической оси, то в случае параллельной ориентации голографические полосы не создавались бы, и регистрировалась бы голограмма с низкой дифракционной эффективностью. Экспериментально были получены значения дифракционной эффективности 40% при нормальной ориентации и 1% при параллельной ориентации полос голограммы относительно оптической оси кристаллов.

Модель Чена была развита в рамках представлений о фотопроводимости полупроводников [122]. Рассматривалась концентрация электронных ловушек с плотностью N_t , при этом предполагалось, что часть ловушек N_t заполнена и часть пустая $\Delta N \equiv N_t - N'_t$. Математический анализ модели в приближении слабого поглощения показал согласие с экспериментальными результатами. Неизвестными оставались природа заполненных и свободных ловушек, а также причины возникновения внутреннего поля. Чен предположил, что это могут быть поля поверхностных зарядов или пиро-поля, известные уже ранее. Как доказательство существования внутренних полей он привел экспериментальное наблюдение фототока без приложенного внешнего поля.

Из эксперимента была определена величина внутреннего поля (70 кВ/см) и соответствующая концентрация электрических зарядов на краях освещенной области, равная $4 \cdot 10^{14}$ электронов/см³. Полученное значение можно считать низким, так как в реаль-

ных кристаллах концентрации дефектов колеблются от 10^{12} см^{-3} в очень чистых кристаллах до 10^{19} см^{-3} и больше в дефектных материалах.

1.3.2. Модель Джонстона

Механизм ФР был рассмотрен в работе Джонстона [13], где было отмечено, что постулированное Ченом [12] постоянное внутреннее электрическое поле не может существовать в материалах, имеющих проводимость, отличную от нуля. Джонстон предложил модель, в которой для переноса заряда в пьезоэлектриках типа ABO_3 , к которым относится ниобат и танталат лития, не требуется наличия внутреннего электрического поля. Он предположил, что при ионизации примесных центров или захвате электрона происходит изменение макроскопической поляризации кристалла P . Пространственно неоднородное освещение сегнетоэлектриков в области примесного поглощения приводит к изменению плотности макроскопической поляризации в освещенной области кристалла. Результирующая плотность поляризационного заряда $\rho_{pol} = \nabla P$ действует как источник электрического поля, под влиянием которого электроны мигрируют из освещенной области. Если на краю этой области достаточно ловушек и рекомбинация отсутствует, то будет наблюдаться эффект ФР, так как захваченный ловушками заряд будет изменять макроскопическую поляризацию. Стационарное состояние наступит, когда поле ∇P будет экранировано накопленным зарядом ρ , т.е.

$$\nabla(P_- - P_+) = (\epsilon - 1)\rho$$

где P_- - вклад заполненных ловушек и P_+ - вклад ионизированных доноров в P . Джонстон отмечает, что направление поляризации должно согласовываться с симметрией кристаллов, следова-

тельно, вектор поляризации всегда параллелен оптической оси кристалла, изменения ρ приводят к изменению показателя преломления.

Джонстон определил, что для изменения $\delta\Delta n$ порядка 10^{-3} (эксперимент [12]), необходима ионизация доноров в 1-2% единичных ячеек ниобата лития. Такая большая величина необходимой концентрации дефектов была связана им с собственными дефектами кристалла.

В настоящее время многими исследователями показано, что механизм ФР, предложенный Джонстоном, не играет роли в образовании ФР или вносит незначительный вклад. Отмечено [6], что модель Джонстона, требующая большой концентрации доноров и акцепторов, не объясняет сильную зависимость ФР от малых концентраций примеси Fe (порядка $10^{-2}\%$). Леванюк и Осипов [17] даже утверждают, что при допущениях Джонстона поляризация вообще не должна меняться. Экспериментально в кристаллах ниобата лития с примесью Cr^{3+} удалось надежно показать изменение поляризации при возбуждении примеси Cr^{3+} импульсами света с длиной волны 530 нм [32, 123]. В чистых кристаллах ниобата лития и с примесью железа изменение поляризации при освещении не удалось обнаружить [32].

Хотя предположения Джонстона о механизме ФР в принципе не оправдались, работа стимулировала интерес исследователей к проблеме направленной миграции электронов в сегнетоэлектриках.

1.3.3. Фотоволтаический механизм фоторефракции

Гласс, Линде и Негран [2] предложили принципиально новое решение проблемы переноса заряда в сегнетоэлектриках.

Исследуя фототоки, текущие в кристаллах $LiNbO_3$, легиро-

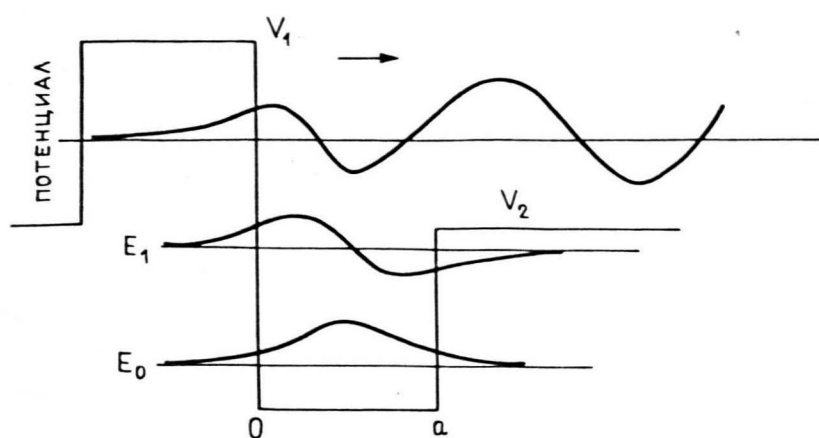


Рис. I.5. Качественное представление собственных решений для связанного и свободного состояний в асимметричной прямоугольной яме

ванных Fe_2O_3 (0,015; 0,045 и 0,2 вес.%) и Cu_2O (0,05 вес.%) без внешнего электрического поля, они обнаружили постоянный электрический ток, текущий в направлении спонтанной поляризации длительное время (более 20 часов) без изменений. Был сделан вывод о том, что такой ток не может быть связан с релаксацией поверхностных или пирозарядов, а обусловлен постоянной электродвижущей силой, которая возникает при облучении светом из примесной области кристалла. Следуя работе [32], рассмотрим ассимметричную прямоугольную потенциальную яму, которая характеризует потенциал центра поглощения (рис. I.5). Решение уравнения Шредингера для этого потенциала дает связанные состояния в яме и непрерывный спектр свободных состояний для энергий

$E > V_2$. При возбуждении из основного состояния в состояние с энергией $V_1 > E > V_2$ электрон может свободно двигаться только в одном направлении. Даже когда барьер является узким и имеется тунелирование, вероятность переноса электрона влево или вправо будет разной. Таким образом, оптическое возбуждение в пироэлектрической матрице с одинаковой асимметрией на всех эквивалентных дефектах приводит к электрическому току. При этом в зависимости от формы потенциала на примесном ионе и от энергии возбуждения фототок может быть направлен как вдоль, так и против полярной оси.

Рассмотрим одномерную модель пироэлектрика (рис. I.6). Очевидно, что вероятности переноса заряда P_+ и P_- в положительном и отрицательном направлениях с примеси I на катионы кристалла A_+ и A_- различны. После возбуждения заряженный дефект релаксирует в новое положение, изменяя перекрытие с катионами таким образом, что вероятности рекомбинаций P'_+ , P'_- отличаются от P_+ и P_- . Постоянный фототок записывается в виде

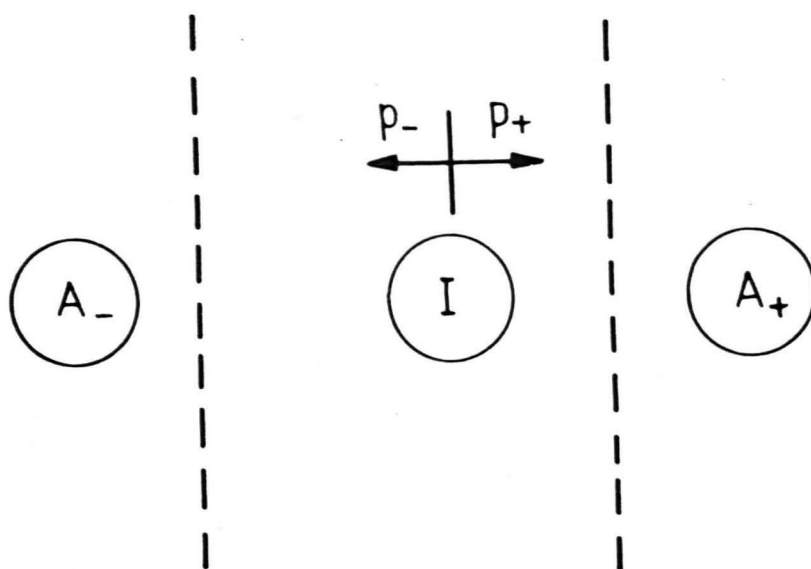


Рис. I.6. Простая одномерная модель пьезоэлектрика, иллюстрирующая процесс переноса заряда при возбуждении примесного иона I , когда вероятности переноса заряда p_+ и p_- на катионы кристалла A_+ и A_- (соответственно) не равны.

$$j = j_e - j_r = e \frac{\alpha I}{\hbar \nu} [\ell_+ (P_+ + P'_+) - \ell_- (P_- + P'_-)] \quad (1.10)$$

где α - коэффициент поглощения, I - интенсивность падающего света и ℓ_+, ℓ_- - длины свободного пробега электронов в положительном и отрицательном направлениях. Дополнительный вклад в фототок дает ионная релаксация, сопровождающая возбуждение и рекомбинацию. Этот ток можно представить в виде

$$j_i = \frac{\alpha I}{\hbar \nu} (z_i \Delta \ell_i) \quad (1.11)$$

где $\Delta \ell_i$ - смещение i -го иона с зарядом z_i , суммирование произведений $z_i \Delta \ell_i$ следует проводить по всем ионам. Полный фототок можно записать как

$$j = K \alpha I, \quad (1.12)$$

где $K = (\hbar \nu)^{-1} [e \ell_+ (P_+ + P'_+) - e \ell_- (P_- + P'_-) + (z_i - z'_i) \Delta \ell_i]$,

z'_i - заряд иона после рекомбинации, e - заряд электрона.

В незакороченном кристалле этот ток создает электрическое поле E , определяемое соотношением

$$j = K \alpha I + \sigma E \quad (1.13)$$

где σ - электропроводность кристалла при освещении. В условиях насыщения $j = 0$, и поле имеет вид

$$|E_{ст}| = \frac{K \alpha I}{\sigma}. \quad (1.14)$$

Коэффициент K зависит от кристалла-матрицы, поглощающего центра, энергии падающего фотона $\hbar \nu$, и, в принципе, от величины поля E , так как микроскопический потенциал меняется при из-

менении внешнего поля, однако поле определяемое проводимостью гораздо меньше, чем микроскопическое поле, поэтому влиянием можно пренебречь.

Поле, созданное фотоволтаическим током и проводимостью кристалла, изменяет показатели преломления из-за электрооптического эффекта (раздел I.1.2), как уже раньше было показано Ченом [12] (раздел I.3.1).

В работе [31] анизотропный потенциал рассмотрен более строго с позиций квантовой механики и получено выражение для фототока (ток пропорционален интенсивности света, при 1 Вт/см^2 и $3,5 \text{ эВ}$ найдено $j = 1,7 \cdot 10^{-9} \text{ А/см}^2$). Сам факт существования фотоволтаического тока в разных материалах можно считать установленным [2, 75, 124-128], однако исчерпывающее объяснение причин его возникновения в настоящее время отсутствует.

Спектральные исследования фототока и фопроводимости в LiNbO_3 [24] дали возможность оценить квантовый выход электронов $\eta \lesssim 4 \cdot 10^{-3}$ (3 эВ, ионизация Fe^{2+}). В расчетах Гласса предполагалось $\eta = 1$. Уточнение значения η дает длину свободного пробега электронов $l \geq 40 \text{ \AA}$, что противоречит модели Гласса. Из голографических измерений (исследовалась перекачка световой энергии между пучками при записи элементарной голограммы) Янг и соотр. [25] также получили большую длину свободного пробега электронов (240 $\text{\AA}$).

В работе [24] предлагается модель фотоиндуцированных флуктуаций, которая впервые была применена для объяснения фототоков в титанате бария. Эта модель анализируется в [129], где отмечается, что фототоки в $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ и $\text{BaTiO}_3\text{-Fe}$ определяются разными механизмами. Сущность флуктуационной модели заключается

в появлении короткоживущих флуктуаций спонтанной поляризации при возбуждении неравновесных электронов. В объеме флуктуации существует электрическое поле $E = \frac{\Delta P}{\epsilon}$, которое, благодаря симметрии кристалла, имеет одинаковое направление во всех флуктуациях, что может привести к макроскопическому электрическому току (более подробно в [9]).

В работах [28-30] фототок был рассчитан, основываясь на асимметрии элементарных электронных процессов. Было предположено, что диэлектрик имеет в запрещенной зоне примесные уровни, с которых происходит фотовозбуждение электронов. Поведение электронов в зоне проводимости в таком случае описывается кинетическим уравнением для функции распределения f_k :

$$\frac{\partial f_k}{\partial t} = I_k^u - I_k^p + I_k^h + I_k^\phi \quad (I.I5)$$

где $I_k^u(f_k), I_k^p(f_k)$ - соответственно скорость возбуждения и рекомбинации электронов, а $I_k^h(f_k), I_k^\phi(f_k)$ - интегралы столкновений с примесями и фононами. Предполагается, что правая часть (I.I5) содержит асимметричный член, в результате стационарное решение кинетического уравнения содержит асимметричную часть, которая приводит к появлению тока. Анизотропная добавка обязана симметрии кристалла - наличию полярной оси. В работе [28] отмечено, что при концентрации примеси 10^{17} см^{-3} механизм возбуждения с примесью в 10^2 раз эффективней, чем механизм рассеяния на примесях и, в свою очередь, механизм рассеяния на примесях в 10^2 раз эффективнее, чем рассеяние на фононах.

В работах [28, I30] анализируются также межзонные переходы и показано, что электрон-фотонное рассеяние и влияние электрон-фотонного взаимодействия на оптические межзонные переходы приводят к фототоку, при этом наибольшую величину имеет ток,

связанный с процессами возбуждения и рекомбинации.

Величина и направление фототока зависит от поляризации и частоты света [30, 131]. В [131] предполагается, что фототок может наблюдаться в любых кристаллах без центра инверсии.

Бурсиан и сотр. [132] указывают, что почти во всех кристаллах, где наблюдается аномальный фотовольтаический эффект, имеется прыжковая поляронная проводимость (см. раздел I.1.3), и уравнение Больцмана не применимо для описания кинетики электронов в этих кристаллах. Однако авторы работы [133] отмечают, что поляронный эффект не оказывает сильного влияния на величину фототока, хотя дает возможность объяснения возникновения больших фотонапряжений.

Постулируя внутреннее электрическое поле, Чен [12] отметил, что возможным источником этого поля может быть пирополе. Связь пироэффекта с ФР исследовалась в работе [134], где было показано, что освещение кристаллов ниобата лития лазерным светом создает в этих кристаллах значительные поля ($E \sim 10^4$ В/см). Такие величины полей оказались в соответствии со значением пироэлектрической постоянной ниобата лития и авторы [134] сделали вывод, что внутреннее поле в кристалле может быть пироэлектрической природы. Шейн и Кресман [135] показали, что в особых условиях, когда нагрев очень велик, пироэффект может вызвать перемещение электрических зарядов, однако авторы приходят к выводу, что пироэффект не может объяснить сепарацию зарядов при обычных условиях. Такой же вывод относительно пироэффекта получен и в работе [136].

Гулбис и Кристофель [137, 138] показали, что выбронная теория сегнетоэлектричества для переходов зона-зона способна

объяснить изменение показателя преломления и возникновение постоянного электрического тока в направлении спонтанной поляризации. Отмечается возможная зависимость тока от направления поляризации света относительно оптической оси кристалла и влияние магнитного поля на величину фототока. Таким образом, в рамках выбронной теории ФР объясняется естественным образом и не требует существования в кристалле асимметрии возбуждения, рассеяния и рекомбинации. Однако на данном этапе развития этой теории трудно провести ее сравнение с экспериментом, так как большинство измерений ФР проведено в области примесного поглощения кристаллов.

1.3.4. Другие механизмы фоторефракции

Как уже было показано выше, на основе фотоволтаического эффекта можно объяснить многие экспериментальные факты, полученные при исследовании ФР в ниобате и танталате лития. Однако некоторые факты, например невозможность полной компенсации ФР внешним электрическим полем и особенности зависимости величины $\delta n_{ст}$ от интенсивности света, трудно объяснить при помощи только одного фотоволтаического эффекта. По-видимому, в создании ФР одновременно с фотоволтаическим участвуют и другие механизмы. Рассмотрим диффузионный механизм ФР, существование которого в разных материалах показано многими авторами [18-23]. Амодеем [18, 19] была выдвинута гипотеза, по которой перераспределение зарядов в $LiNbO_3$ под действием светового пучка объяснялось тепловой диффузией электронов в зоне проводимости, а ФР создавалась пространственными зарядами по механизму Чена (см. раздел 1.3.1). Величина электрического поля E_D в таком случае определяется из условия

$$e D_e \frac{\partial n}{\partial z} + e \mu n E_D = 0, \quad (I.16)$$

где n - концентрация неравновесных электронов, D_e - коэффициент диффузии электронов. В (I.16) первый член слева описывает диффузионный ток. Было показано [19], что напряженность поля, созданного диффузией, пропорциональна пространственной частоте Ω

$$E_D = \frac{kT}{q} \Omega. \quad (I.17)$$

Как видно, E_D зависит линейно от температуры и пространственной частоты, но не зависит от параметров материала. Из (I.17) следует, что в диапазоне видимого света и при комнатных температурах E_D не может превышать 8-9 кВ/см. В работах [18, 19, 139] предполагалось, что транспортная длина носителей мала по сравнению с постоянной голографической решетки и число фотовозбужденных неравновесных носителей гораздо меньше общего числа донорных центров. Последнее допущение обычно хорошо выполняется, однако транспортная длина носителей заряда в некоторых материалах сравнима с периодом голографической решетки, и как показано в работе [23], это существенно влияет на параметры голографической записи и определяет доминирующую роль механизма диффузии в восстановленных кристаллах $KNbO_3$. Исследования ФР голографическим методом в восстановленных кристаллах $LiNbO_3$ дают авторам [108, 140-142] основание сделать вывод, что в данном случае преобладает диффузионный механизм. Орловски и Кретциг [143, 144], используя представления о диффузионном механизме ФР в кристаллах ниобата и танталата лития, определили знак носителей тока в этих кристаллах. Оказалось, что преобладание дырочной или электронной проводимости в кристаллах $LiNbO_3-Fe$

зависит от соотношения ионов Fe^{2+}/Fe^{3+} . При значении $Fe^{2+}/Fe^{3+} = 0,01$ проводимость почти полностью определяется положительными дырками, а при значении $Fe^{2+}/Fe^{3+} = 1$ преобладает электронная проводимость.

Как следует из выражения (I.17), при низких пространственных частотах диффузионное поле мало, и этим эффектом можно пренебречь. Такая ситуация получается при облучении кристалла световым пятном с диаметром ≥ 10 мкм, что характерно при использовании поляризационно-оптического метода исследования ФР. В таком случае величина диффузионного поля составляет $E_D \leq 150$ В/см, и $\delta\Delta n$ не превышает $2 \cdot 10^{-6}$. Это значение находится на уровне предела чувствительности данного метода.

Интересные соображения о механизме возникновения ФР были выдвинуты Леванюком и Осиповым [16, 17]. Они указали, что при воздействии света на сегнетоэлектрические кристаллы их показатель преломления может меняться и без протекания макроскопического тока (поляризационный механизм). Анализируя результаты измерений ФР при освещении кристаллов эллиптическим световым пятном (особенностью методики является использование различной ориентации эллиптического светового пятна относительно оптической оси кристалла), авторы [145] приходят к выводу, что в нелегированном $LiNbO_3$ изменение двулучепреломления, по-видимому, определяется поляризационным механизмом.

В работах [107, 146] было обращено внимание на зависимость стационарных величин изменений двулучепреломления от интенсивности возбуждающего света. Из феноменологической теории фото-волтаического механизма ФР [2, 15, 108] следует, что уже при довольно небольших интенсивностях света должно наблюдаться

насыщение стационарных величин Φ_R , т.е. с увеличением интенсивности света выше некоторого предела $\delta\Delta n_{CT}$ не должно увеличиваться. Этот вывод следует из экспериментальных данных о большой разности между величинами темновой и фотопроводимости. Проводимость освещенной области кристалла, входящая в выражение для стационарного электрического поля, созданного фотовольтаическим эффектом (I.I4), складывается из σ_T и $\sigma_\phi = \beta I$, где β - коэффициент пропорциональности, зависящий от параметров кристалла и длины волны возбуждающего света. Следовательно, при условии $\sigma_T \ll \sigma_\phi$ из (I.I4) получаем

$$K_{CT} = \frac{K\alpha}{\beta} \quad . \quad (I.I8)$$

Входящие в выражение (I.I8) величины не зависят от интенсивности света и в результате величина $\delta\Delta n_e$ (см. раздел I.3.3) также не должна зависеть от интенсивности света. Пытаясь обойти эти трудности, возникающие при объяснении результатов эксперимента фотовольтаическим эффектом, авторы [107, 146] предлагают привлечь поляризационный механизм. Попытка определить вклад поляризационного механизма в создание Φ_R в кристаллах $LiNbO_3$ была сделана в работе [27]. Интерференционным методом исследовалось влияние окружающей кристалл среды на область кристалла, в которой была произведена оптическая запись. При погружении такого кристалла в проводящую прозрачную жидкость, величина $\delta\Delta n$ около поверхности кристалла падала до нуля, а в его объеме сохраняла прежнюю величину. Исходя из этих результатов, авторы [27] сделали вывод, что доля поляризационного механизма низка - с точностью до разрешающей способности аппаратуры $\Delta n_e = 3 \cdot 10^{-5}$. Как в легированных железом кристаллах

$LiNbO_3$ (содержание примеси $\geq 0,05$ вес.%), так и в номинально чистых образцах, ФР вызвана электрическим полем, т.е. электрооптическим эффектом.

Основные выводы по обзору литературы

1. Эффект фоторефракции в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ может быть как примесным, так и собственным, а примесь железа является самой эффективной для увеличения фоточувствительности этих кристаллов.

2. Основным механизмом фоторефракции в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ является аномальный фотовольтаический механизм.

3. Многие важные для понимания эффекта фоторефракции вопросы не ясны, в частности:

- 1) вклад каждого из механизмов фоторефракции полностью не ясен и не удалось на их основе объяснить всей совокупности полученных экспериментальных фактов,
- 2) не изучена достаточно природа центров, активных в процессах фоторефракции, в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$,
- 3) имеются различные мнения о механизме спонтанных скачков величины $\mathcal{J}\Delta n$ при воздействии света на $LiNbO_3$ -Fe (эффект Баркгаузена и электрический пробой на поверхности кристалла).

Г л а в а 2

ОБЪЕКТЫ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

2.1. Объекты исследования

В работе использовались кристаллы $LiNbO_3$, $LiNbO_3-Fe$ с концентрациями примеси Fe (0,3; 0,1 и 0,02 весовых %) и $LiNbO_3-Cu$ (0,1 вес.%), а также монокристаллы танталата лития с примесями Fe (0,3; 0,1; 0,03 вес.%). Примесь вводилась в шихту в виде окиси железа. Содержание железа в выращенных кристаллах определялось методом химического анализа. Содержание неконтролируемых микропримесей в шихте составляло не более $5 \cdot 10^{-4}$ вес.%. Монодоменизация проводилась приложением вдоль оси $\vec{c}$ постоянного электрического поля к кристаллу, нагретому до температуры, превышающей температуру Кюри на 10–20 К. Скорость охлаждения образцов составляла 50–70 К/ч.

После монодоменизации кристаллы ориентировались. Ориентация производилась оптическими методами как по коноскопическим фигурам, так и $\longrightarrow$ в скрещенных поляризаторах [42,147].

В работе использовалась упрощенная схема ориентировки (рис.2.1). Показанная на рис.2.1 схема давала на экране хорошо наблюдаемые коноскопические фигуры. Сначала по отраженному лучу кристалл устанавливался перпендикулярно падающему свету, потом центр коноскопической фигуры (например, на рис.2.1 точка A) совмещался при помощи ориентации кристалла с оптической осью схемы. По лимбам столика Федорова отсчитывались углы поворота.

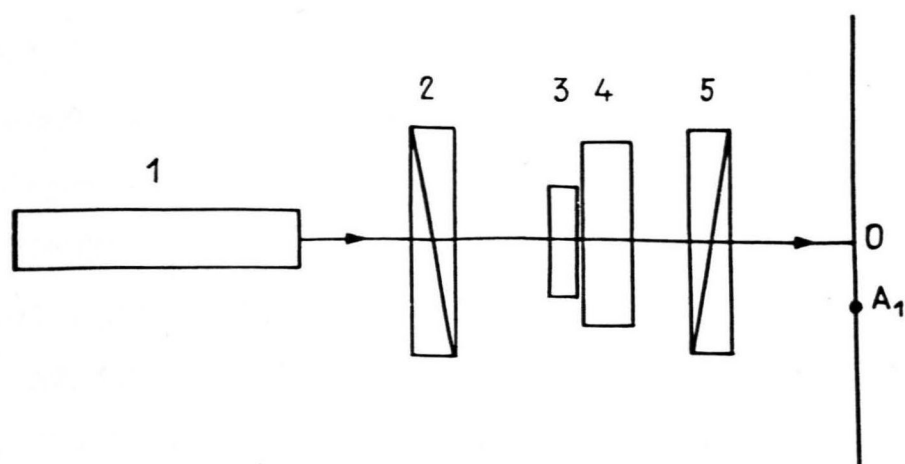


Рис. 2.1. Оптическая схема для наблюдения конусо-
скопических фигур: 1 – лазер; 2, 5 –
– поляризаторы; 3 – светорассеивающая
пластинка; 4 – исследуемый кристалл.
Объекты 3 и 4 закреплены на столике
Федорова.

Поправка на показатель преломления находилась из диаграммы [147]. Отклонение оптической оси кристалла от плоскости пластинки, ориентированной по описанному методу, составляло $\pm 1,5^\circ$.

Оптическим методом можно определить только направление оптической оси ($\vec{c}$) кристалла, однако используя риски, имеющиеся на боковой поверхности "були", можно определить также оси X_1 и X_2 [42]. В эксперименте обычно использовались плоскопараллельные пластинки с толщиной $h = 0,2 \div 1,5$ мм, длина и ширина которых была $7 \div 10$ мм. Оптическая ось и ось X_1 обычно ориентировалась параллельно плоскости пластинки, а ось X_2 - перпендикулярно (если ориентация кристалла была иной, то это указано в тексте).

Большое значение имеет обработка поверхностей образцов. Царапины и штрихи, если на них попадает лазерный луч, рассеивают свет, а это связано с изменением интенсивности падающего луча, и тем самым вносят ошибку в измерения. Непараллельность граней также вносит ошибку, так как в вычислениях используется средняя толщина. Кроме того, особенно в $LiNbO_3$, где большое двулучепреломление, непараллельность граней создает дополнительную трудность, связанную с большим $\Delta \Gamma / \Delta x$, где $\Delta \Gamma$ - изменение разности хода лучей, Δx - изменение координаты на плоскости пластинки.

Образцы имели местные ошибки поверхности $\Delta N_1 \approx \Delta N_2 \approx 0,2$ ($\Delta h \pm 0,1$ мкм), плоскопараллельность $\theta = 20''$ и чистоту поверхности $P \approx II$ кл.

2.2. Экспериментальная установка для измерения изменений двулучепреломления

Для исследования фоторефракции (ФР) была создана установка

на базе интерференционно-оптической схемы с компенсатором [53] . Установка предназначена для исследований изменений двулучепреломления $\delta\Delta n = \delta(n_e - n_o)$ в анизотропных кристаллах. Измерения $\delta\Delta n$ возможны при воздействии мощного лазерного света в непрерывном режиме (интенсивность света с фокусировкой до 10^5 Вт.см²), в температурном диапазоне от 100 до 600 К, в электрическом поле (до 20 кВ.см⁻¹ в воздухе и в кремниевом масле до 100 кВ.см⁻¹).

В качестве источников света использовались лазеры: ЛП-38, ЛП-36, ЛП-31, аргоновый лазер фирмы "Spectra Physics" модель I7I-08 и лазер на красителях "Spectra Physics" модель 375. В качестве фотоприемника использовался ФЭУ-51. Схема монтировалась на массивном (~ 1 т) металлическом столе с амортизацией.

2.2.1. Оптическая схема и методика измерений

Для измерений $\delta\Delta n$ использовалась интерференционно-оптическая схема, описанная в книге Сони́на и Василевской [53] . Особенностью установки является автоматическая компенсация разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами (рис. 2.2). Автоматическая компенсация дает возможность проводить сканирование по образцу и непрерывно измерять $\delta\Delta n$. Возможны также измерения временных зависимостей $\delta\Delta n$. Удобен компенсационный метод тем, что $\delta\Delta n$ прямо пропорционально перемещению компенсационного клина. Для определения величины $\delta\Delta n$ перемещения клина, которые фиксировались на самопишущем потенциометре, необходимо умножить на постоянную величину, зависящую от параметров компенсационного клина и толщины кристалла h . Предполагая, что $\delta\Delta n$ одинаково по всей толще кристалла, измерение раз-

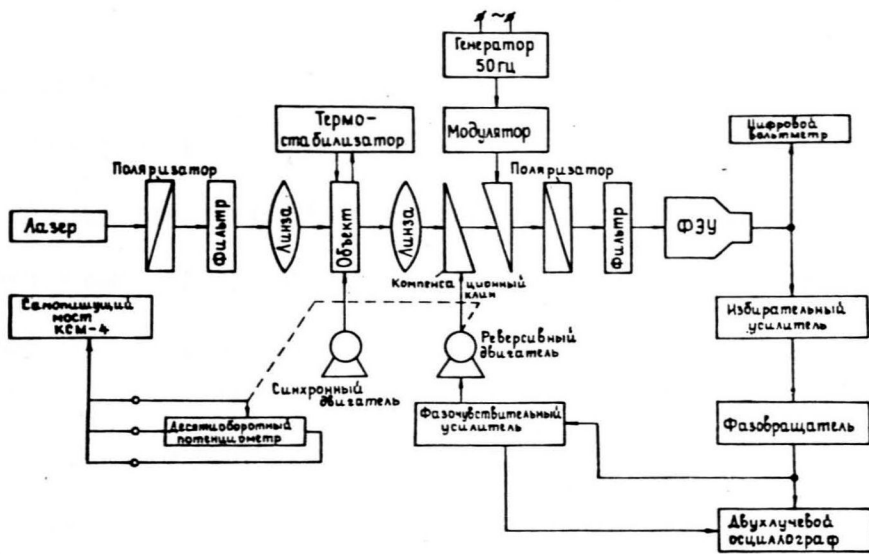


Рис. 2.2. Блок-схема установки для измерения изменений двулучепреломления.

ности хода, выраженная в длинах волн

$$\Delta \Gamma = \frac{h \cdot \delta \Delta n}{\lambda}$$

использовалась для определения изменений двулучепреломления

$$\delta \Delta n = \frac{\Delta \Gamma \lambda}{h} .$$

Для определения $\Delta \Gamma$ кварцевый клин (применялся клин от микроскопа МПД-2) градуировался. Определялась длина перемещения клина между двумя максимумами фототока (ρ_0), отвечающая разности хода на одну длину волны. Отношение перемещения клина (x), полученное при измерениях, к ρ_0 дает $\Delta \Gamma$, и окончательно имеем

$$\delta \Delta n = \frac{x \lambda}{\rho_0 h} .$$

Следует отметить, что отношение x/ρ_0 у кварцевого клина имеет очень слабую спектральную зависимость (400–650 нм), что значительно упрощает исследования с разными длинами волн.

Так как использовалась общеизвестная поляризационно-оптическая схема [53], то остановимся только на некоторых особенностях методики измерений $\delta \Delta n$.

2.2.2. Система автоматической компенсации разности

фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами

Для компенсации применялись два оптических клина. Параллельный пучок света распространялся через клинья, которые образовывали плоско-параллельную пластину, так как углы клиньев были ориентированы противоположно. Один из клиньев использовался как модулятор. Модулировался в небольших пределах ($\pi/6$)

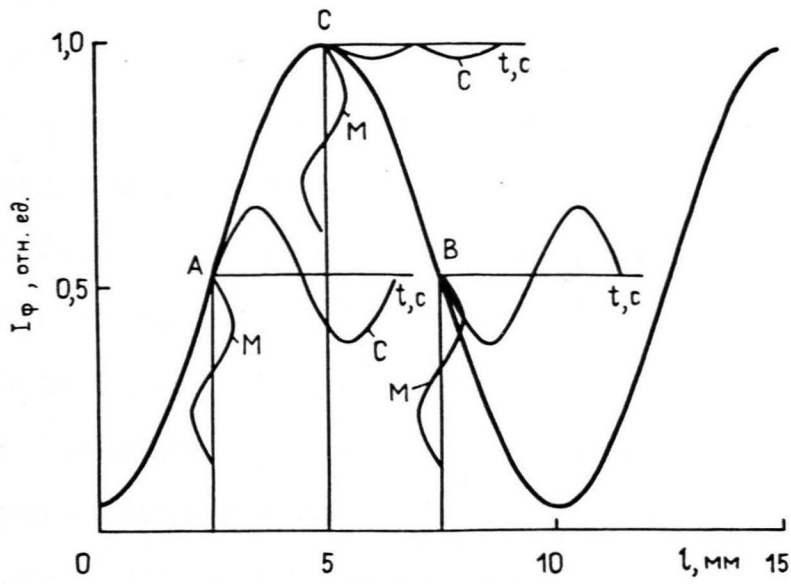


Рис. 2.3. Зависимость фототока от положения компенсирующего клина из кристаллического кварца. В положениях А, В и С показаны три различные случая модуляции фототока колебаниями второго кварцевого клина.

сдвиг фазы между обыкновенным и необыкновенным лучами. Вторым клин при помощи электромотора и микрометрического винта с рельсом мог перемещаться перпендикулярно лучу. На рис. 2.3 показана зависимость фототока (I_{ϕ}) от перемещения компенсирующего клина (X). Фототок имеет минимумы и максимумы, т.е. регистрируется интерференция поляризованного света. В минимумах сигнал полностью не исчезает, так как поляризатор и анализатор в скрещенных положениях дают некоторый фон. В точках A , B и C (рис. 2.3) показано действие модулятора на фототок, в результате которого постоянный сигнал с ФЭУ содержал переменную составляющую. В разных положениях компенсирующего клина (точки A , B и C) переменный сигнал (на рис. 2.3 кривые c) имел относительно модулирующего сигнала (M) сдвиг фазы $\pm 90^\circ$ (точки A , B), а в максимуме (минимуме) – удвоенную частоту. Такая зависимость фазы переменного сигнала использовалась для автоматического перемещения клина в положения максимума интерференции.

Электромеханический модулятор (колеблющийся клин) давал собственный сдвиг по фазе, что мешало нормальной работе автоматической компенсирующей схемы. Для устранения этого сдвига применялся фазовращатель (рис. 2.4), сдвиг фаз контролировался при помощи двулучевого осциллографа.

Для записи перемещения клина использовался десятиоборотный потенциометр с линейной характеристикой. На рис. 2.5 показана схема соединения потенциометра с самопишущим мостом, которая обеспечивала надежную запись перемещений клина и практически исключала погрешности из-за колебаний температуры или изменения напряжения, питающего схему.

Используемый принцип регистрации изменений двулучепреломления слабо чувствителен к изменениям постоянной составляющей

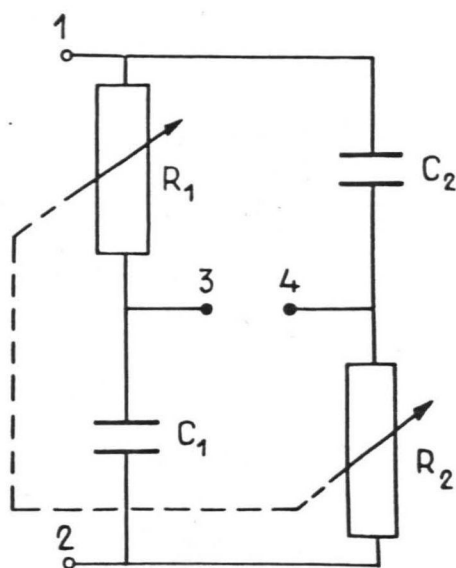


Рис. 2.4. Схема фазовращателя: 1, 2 - вход;
3, 4 - выход;

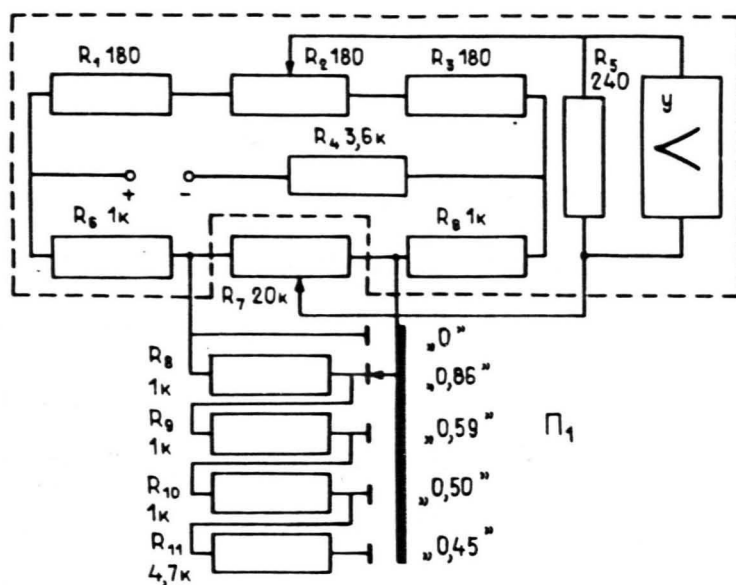


Рис. 2.5. Схема включения измерительного десятиоборотного линейного потенциометра R_7 в самопишущий прибор: R_2 - реохорд самопишущего прибора; Π_1 - переключатель масштаба отображения на бумажную ленту перемещений компенсирующего клина.

сигнала. Изменение интенсивности лазерного света, расфокусировка из-за ФР, побочный свет и другие факторы, изменяющие постоянный фон, в некоторых пределах не влияют на регистрацию δn . Экспериментально было установлено, что изменение интенсивности (нейтральные фильтры) лазерного света в 200 раз практически не влияет на показания δn , регистрируемые установкой.

2.3. Методика измерения фоторефракции

Для измерений δn под воздействием мощного света определялось начальное положение разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами при помощи нейтральных светофильтров, которые помещались перед кристаллом и пропускали слабый свет, не создающий δn , но достаточный для уверенной работы установки. При таком положении светофильтров проверялась по δn также температурная стабильность в термостате. После определения нулевой линии луч перекрывался шторкой, светофильтры переставлялись за кристалл, шторка удалялась и регистрировалась временная зависимость δn . В случае гауссового распределения интенсивности в каждой точке освещенной области кристалла имеется разный δn (рис. I.4), и суммирование всех лучей может нарушить сигнал компенсации. Для устранения этого недостатка выходящий из кристалла пучок света диафрагмировался, и для регистрации δn использовалась центральная часть светового пучка, кроме того по предварительным оценкам величины δn выбиралась нужная толщина кристалла. В работе применялись кристаллы толщиной 0,2–0,3 мм для регистрации максимальных значений δn (около $3 \cdot 10^{-3}$) и толщиной 1–10 мм для исследования электрооптического эффекта или других измерений, где необ-

ходима высокая разрешающая способность установки.

В некоторых экспериментах, где было необходимо менять направление поляризации света, распределение интенсивности в световом пучке или провести спектральные исследования, применялась двухлучевая схема (рис. 2.6). Для регистрации использовался мало мощный гелий-неоновый лазер, а для облучения применялся аргонный лазер. На рис. 2.6 показан случай, когда измерительный и облучающий световые лучи распространяются навстречу друг другу, однако иногда применялась схема, в которой пучки соединялись до образца, а после образца помещался красный светофильтр. Двухлучевая схема удобна и в исследованиях релаксационных процессов: не нужно переставлять светофильтры, на что тратится время и не много сдвигается исследуемая точка, так как реальный светофильтр является в какой-то степени клином (на установке использовались светофильтры с плоскопараллельностью $\theta \leq 20''$).

2.4. Исследование топографии ФР

Топография ФР исследовалась тонким (15 мкм) сфокусированным световым пучком. Обычно исследовалась запись, полученная параллельным пучком. Вначале устанавливалась перед кристаллом телескопическая оптическая система из двух объективов. Объективы устанавливались строго на оптической оси схемы, юстировка проводилась при помощи экрана с крестом, который помещался на расстоянии $3 \div 4$ м от второго объекта. Вначале без объективов совмещались центры лазерного луча и креста на экране, потом устанавливался второй объектив (фокусирующий луч на кристалл) и юстировался так, что центр расширенного пучка совпадал с центром креста. Таким же образом юстировался и первый объектив.

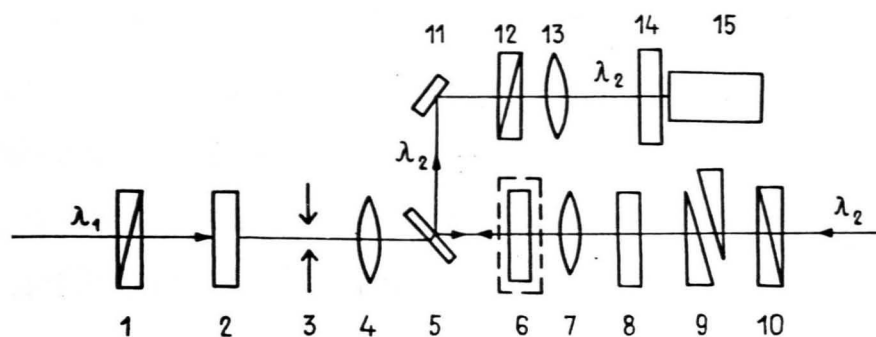


Рис. 2.6. Двухлучевая схема установки для измерения изменений двулучепреломления:
 I, IO, I2 – поляризаторы света; 2 –
 – вращатель поляризации; 3 – диафраг-
 ма; 4, 7, I3 – линзы; 5 – светоделитель;
 6 – кристалл в термостате; 8,
 I4 – светофильтры; 9 – кварцевые
 клинья; II – зеркало.

Параллельность лучей после телескопической системы проверялась при помощи плоскопараллельной пластинки. Отраженные от обеих поверхностей пластинки лазерные лучи на экране давали интерференционную картину. Изменение расстояния между объективами изменяет угол расходимости пучка после системы, и в результате меняется расстояние между полосами интерференции. Телескопическая система юстировалась так, что полосы имели наибольшее расстояние или исчезали. Следует отметить, что при помощи интерференционной картины, создаваемой поверхностями пластинки в параллельных лучах лазерного света, можно также оценить качество исследуемых пластинок из ниобата и танталата лития. При этом в ординарных лучах проявляется обработка поверхности, а в экстраординарных добавляется и неоднородность материала, так как колебание состава кристалла больше влияет на величину n_e .

Для измерения распределения $\delta\Delta n$ по координатам кристаллической пластинки в окрестности облучения кристалл перемещался с определенной скоростью перпендикулярно световому лучу. Соотношение между скоростями передвижения образца и бумажной лентой на самопишущем приборе можно было менять. Изменением этого соотношения скоростей можно было выбрать необходимый масштаб отображения кристаллической пластинки. Обычно использовалось увеличение отображаемой области кристалла в 50–100 раз. Разрешение по координате на кристаллической пластинке лимитируется диаметром зондирующего луча (15 нкм) и в таком случае имеет смысл выбрать увеличение масштаба не более чем в 200 раз.

Принцип действия поляризационно-оптической схемы, используемой в нашей установке, требует оптическую ось кристалла ориентировать под углом 45° к направлению поляризации лазерно-

го луча. Руководствуясь такой необходимостью, перемещение кристалла производилось перпендикулярно лазерному лучу и под углом 45° к плоскости оптической схемы. Держатель кристалла имел лимб с делениями в градусах. Кристалл вначале ориентировался на погасание, а потом поворачивался на 45° . Точность сканирования параллельно оптической оси зависела от точности установления прямого угла между направлением поляризации лазерного света и плоскости оптической скамьи. Для уточнения направления поляризации лазерного света применялся поляризационный фильтр (Π_1), который ориентировался при помощи другого такого же фильтра (Π_2) следующим образом. Фильтр Π_1 ориентировался приблизительно на максимум пропускания, а Π_2 устанавливался за Π_1 в скрещенном положении. Поворот Π_2 вместе с держателем на 180° в плоскости оптической скамьи приводил также к скрещенному положению, если угол поляризации Π_1 прямой, а нарушение скрещенного положения указывало на неточность ориентировки Π_1 . В таком случае отмечалось положение Π_2 , определялась величина и направление угла, на какой нужно повернуть Π_2 для погасания, фильтр Π_2 поворачивался на половину этого угла, а полное погасание устанавливалось фильтром Π_1 , который поворачивался на оставшуюся половину угла.

Для получения топограммы предварительно записывалась нулевая линия при помощи только второго объектива, первый объектив снимался, однако конструкция держателя позволяла возобновить прежнее положение. После записи нулевой линии кристалл перемещался обычно на середину нулевой линии, устанавливался первый объектив, производилась запись с регистрацией временной зависимости $\delta \Delta n$, кристалл и бумажная лента на самописце

устанавливались в начале нулевой линии и производилось вторичное сканирование с записью топограммы ФР.

2.5. Определение параметров лазерного пучка

В работе использовалось только одномодовое лазерное излучение. В таком случае распределение интенсивности света имеет гауссову форму

$$I = I_0 \exp[-2(r/\omega)^2] \quad (2.1)$$

где I_0 - интенсивность света в центре пучка, r - текущая полярная координата распределения, ω - размер светового пучка на уровне снижения интенсивности света в e^2 раз.

Полный поток лазерного излучения (P) можно найти из выражения (2.1), причем

$$I_0 = 2P/\pi\omega^2 \quad (2.2)$$

P измерялось измерителями мощности лазерного света КИМ-1 и моделью 404 формы "Spectra Physics". Приборы измеряли (по паспорту) мощность с абсолютной погрешностью $\pm 10\%$ и $\pm 15\%$ соответственно. Сравнивались показания приборов при измерении стабилизированного (0,5%) излучения аргонового лазера ($\lambda = 457,9$ нм, 20 мВт ÷ 250 мВт). Полученные результаты совпадали с погрешностью $\pm 4\%$.

Для измерения диаметра лазерного пучка использовалось сканирование его тонкой диафрагмой (11 мкм) и оптической щелью. В случае тонких пучков (в фокусе линзы) использовалась одна сторона щели, т.е. щель использовалась как шторка. Методика изменения диаметра лазерного пучка этими приборами описана Климовым [148].

Исследования ФР при больших интенсивностях непрерывного лазерного излучения возможны только при использовании сфокусированного света. Из-за явления дифракции, влияния параметров лазерного излучения и объектива световые лучи не сходятся в одной точке, а образуют пучок с минимальным диаметром α' . Для определения интенсивности сфокусированного света определялись геометрические размеры пучка в окрестности фокуса линзы (рис.2.7) Полученные результаты измерения величины минимального диаметра пучка хорошо согласуются с формулой [149]:

$$\alpha' = \frac{4}{\pi} \lambda \frac{f}{D} \quad , \quad (2.3)$$

f - фокусное расстояние линзы и D - диаметр лазерного пучка. По этим результатам определялась средняя интенсивность света

$$I_{cp} = \frac{4P}{\pi \alpha'^2} \quad . \quad (2.4)$$

Так как в случае фокусированного света диаметр пучка после линзы зависит от расстояния до нее, то для исследований по измерениям диаметра пучка в перетяжке определялась длина области (ρ), пригодная для использования в экспериментах. Считалось, что допустимы колебания величины диаметра светового пучка в пределах 10%. Рассчитанная по формуле [149]

$$\rho = 4 \lambda \left(\frac{f}{D} \right)^2 \quad (2.5)$$

длина области минимального диаметра получалась в 2 ÷ 3 раза больше, чем определенная в пределах изменения α' на 10%. В пределах величины ρ , рассчитанной по формуле (2.5), величина диаметра светового пучка колеблется на 30 ÷ 50%. В исследованиях

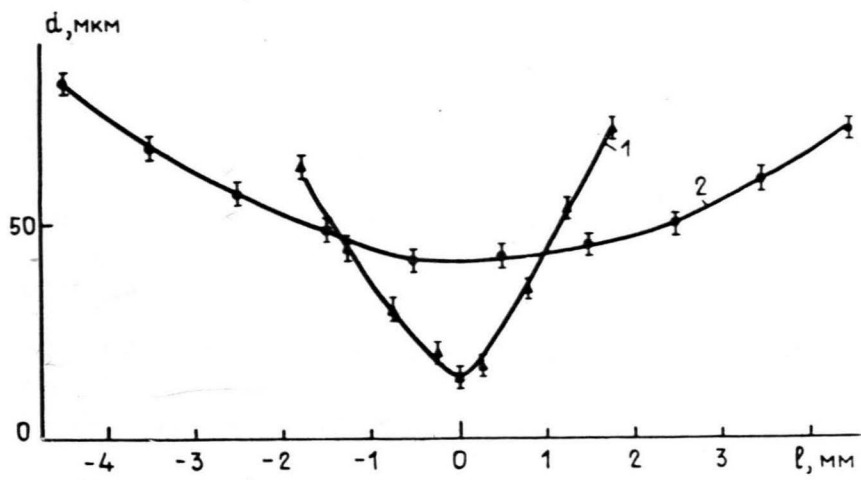


Рис. 2.7. Размер диаметра лазерного пучка в прифокальной области фотообъективов с фокусным расстоянием 50 мм (1) и 135 мм (2).

ФР с объективом с $f = 50$ мм при $\lambda = 514,5$ нм и $D = 2,1$ мм d принимался равным 15 мкм, а допустимая в экспериментах длина пучка - 0,5 мм, для объектива с $f = 135$ мм соответственно $d = 40$ мкм и $P = 2,5$ мм (см. рис. 2.7). Толщина кристалла h в экспериментах со сфокусированным лазерным светом всегда была меньше чем P .

Для работы с П-образным распределением интенсивности света из распределения Гаусса при помощи оптической щели вырезалась узкая центральная полоска, и при помощи объектива отображалась на образец. Особое внимание обращалось на точность фокусировки так как от этого зависит однородность освещения полоски (рис. 2.8).

Для исследований ФР в кристаллах под действием внешнего электрического поля (E) и для определения электрооптических коэффициентов, на поверхность кристаллов наносились электроды напылением в вакууме слоя серебра. Использовалось два типа электродов. В одном случае покрывались электродами противоположные грани куба, вырезанного из исследуемого материала, а в другом случае, когда использовались тонкие пластинки и необходимо было приложить E в плоскости пластинки, конфигурация электродов показана на рис. 4.4,а (см. главу 4).

Величина электрического поля в случае тонких пластинок определялась по выражению

$$E = \kappa_{\Xi} \frac{U}{L} \quad (2.6)$$

где $\kappa_{\Xi} = (1 + 0,44 h/L)^{-1}$, U - напряжение на электродах, h - толщина кристалла, L - ширина полоски [150]. Для работы в полях, превышающих пробойные поля воздуха, образцы погружались

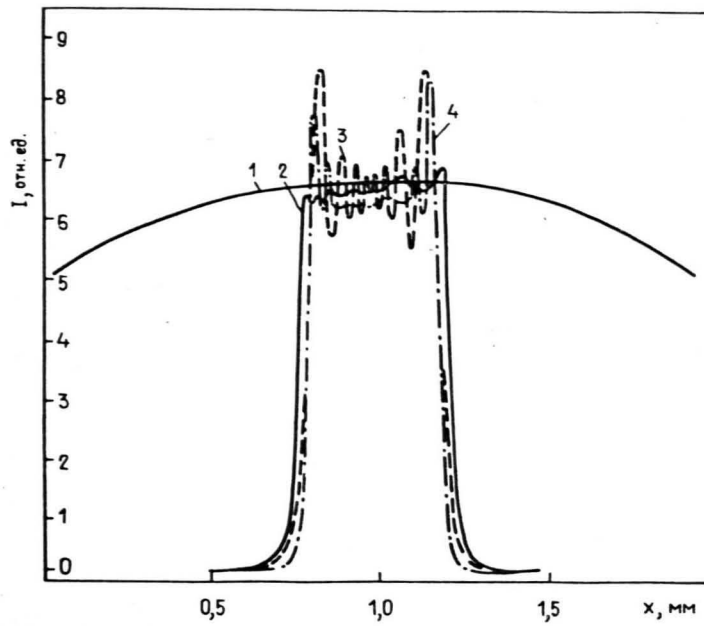


Рис. 2.8. Распределение плотности мощности излучения в лазерном пучке (1) в плоскости изображения узкой щели, помещенной в лазерном пучке перед объективом (2). На расстоянии 1 мм (3) и 2 мм (4) от плоскости изображения щели однородность плотности мощности излучения ухудшается.

в кремниевое масло ВКЖ-94, прозрачное в видимой области света (рис. 2.9). Как источники стабилизированного напряжения использовались приборы ВС-22 и ВС-23.

2.6. Измерения и стабилизация температуры

Важное место в данной методике измерения ФР занимает термостат. Необходима высокая точность стабилизации температуры ($\pm 0,05$ К), так как в кристаллах ниобата и танталата лития двулучепреломление изменяется с температурой $\frac{\delta \Delta n}{\Delta T} \approx 2,5 \cdot 10^{-5} \text{ К}^{-1}$ (рис. 2.10). Изменение температуры на несколько градусов создает колебания $\delta \Delta n$, сравнимые с эффектом ФР.

В работе применялись термостаты трех типов, так как в диапазоне температур 100 – 500 К трудно создать универсальный прибор, надежно работающий в высоких электрических полях и с разными окружающими средами (масло, вода, газ, вакуум).

При комнатных и выше температурах использовалась небольшая термостабилизированная камера (рис. 2.11), закрепленная на микрометрическом столике который обеспечивал передвижение образца и его ориентацию. Датчиком температуры служила термопарная батарея. При этом одна из семи термопар находилась над нагревателем, а остальные – вблизи образца. Такая конструкция заметно облегчала автоматическую регулировку и стабилизацию температуры. Недостатком такого расположения термопар является необходимость градуировки термостата. В работе для измерения температуры применялась отдельная термопара. Регулятором температуры служил прибор ВРТ-3, в котором тиристоры были заменены тиристорами средней мощности КУ202Н, что обеспечило более плавную регулировку при малых мощностях нагрева.

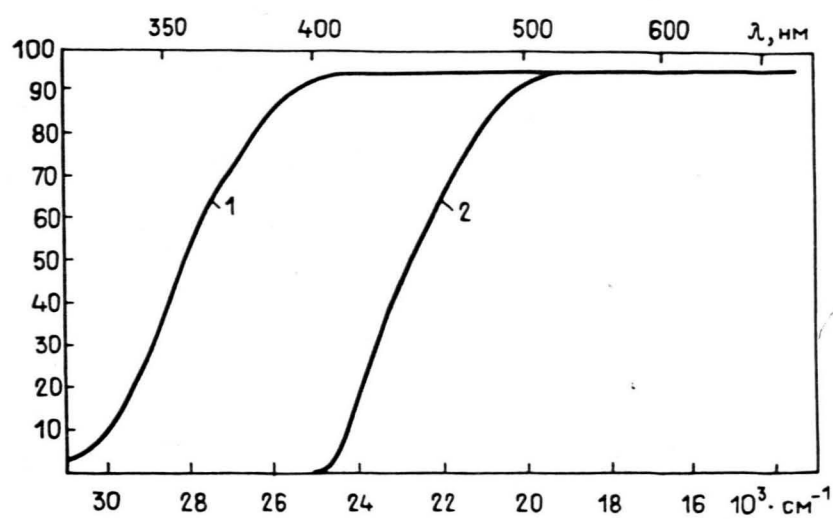


Рис. 2.9. Спектры пропускания диэлектрических жидкостей: 1 – кремниевое масло ВКМ-94; 2 – трансформаторное масло. Толщина слоя 10 мм.

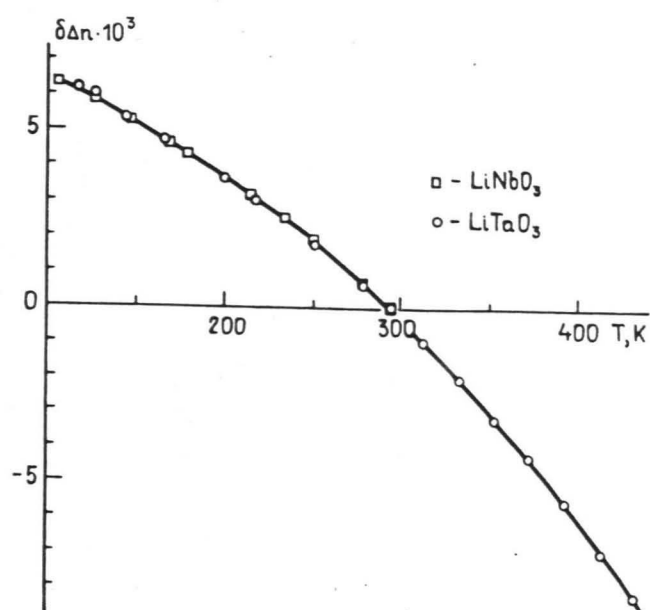


Рис. 2.10. Температурная зависимость изменений естественного двулучепреломления в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3 .

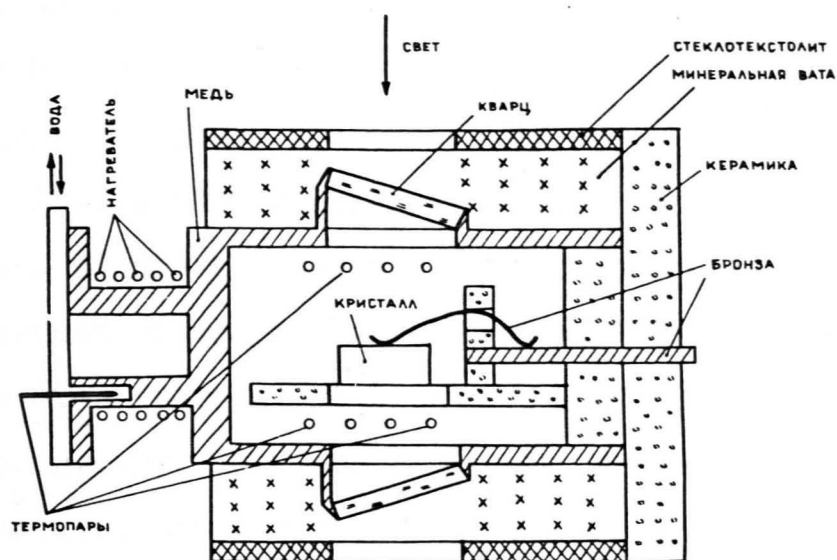


Рис. 2.II. Схема термокамеры с кристаллодержателем. Благодаря бронзовым стержням и пружинам (используются два стержня и две пружины) возможны исследования фоторефракции в электрическом поле.

В случае низких температур использовался вакуумный криостат с нагревателем и платиновым сопротивлением, которое служило для измерения и регулировки температуры. Регулятор температуры ВРТ-3 в случае термосопротивления был незначительно изменен. Провод от датчика напряжения отпаивался от клеммы I2 (принципиальная схема прибора И-102, входящего в ВРТ-3) и припаивался к свободной клемме I4. Это дало возможность собрать мостовую схему (рис. 2.12), использовать имеющийся в приборе И-102 источник постоянного напряжения, и сигнал от моста подать на усилитель (клеммы I2, I6). В данном варианте вместо сигнала рассогласования термопары и датчика опорного напряжения усиливался и обрабатывался сигнал от моста. Благодаря высокой чувствительности ВРТ-3, через $R_{\rho t}$ протекал электрический ток $I - 3 \text{ мкА}$, обеспечивающий достаточную точность измерения температуры [151]. Следует заметить, что использование одного датчика вблизи кристалла, несмотря на широкие возможности прибора ВРТ-3, замедляет установление стабильной температуры, но в данном случае важнее оказалась простота конструкции.

В измерениях с жидкой окружающей средой использовался термостабилизатор, описанный в работе [152]. Конструкция камеры близка ^кизображенной на рис. 2.11. Вместо термопар использовались термосопротивления КНТ-1 (10 кОм и 100 кОм). Сопротивление 10 кОм закреплялось на кристаллодержателе, который помещался в кварцевой кювете с жидкостью, а сопротивление 100 кОм крепилось рядом с нагревателем и охладителем. При комнатных температурах такая система работала надежно, однако выше 80°C термостат становится нечувствительным.

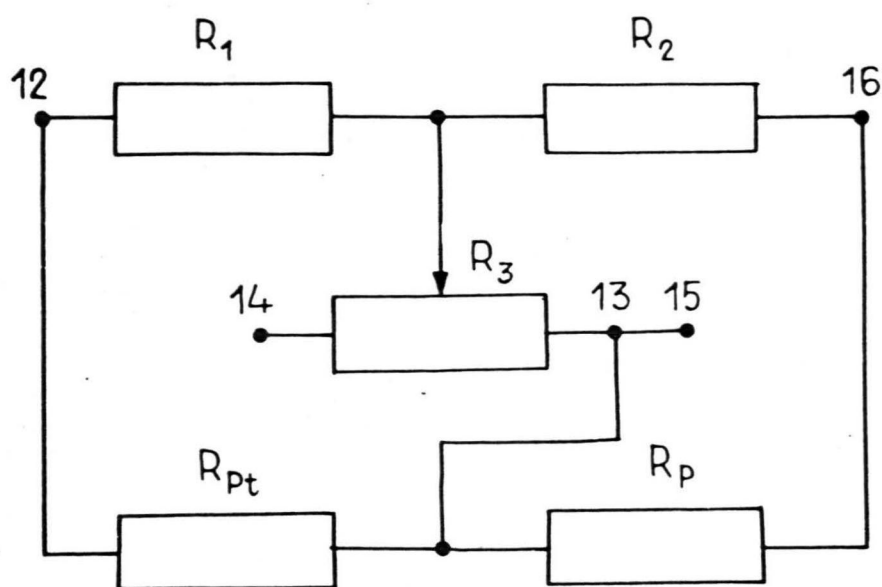


Рис. 2.12. Схема включения платинового термосопротивления ($75,8 \text{ Ом}$ при 293 K) в измерительную схему регулятора температуры ВРТ-3: $R_1 = R_2 = 108,3 \text{ Ом}$; $R_3 = 1,5 \text{ кОм}$. Номера клемм как на приборе И-102 (входит в ВРТ-3).

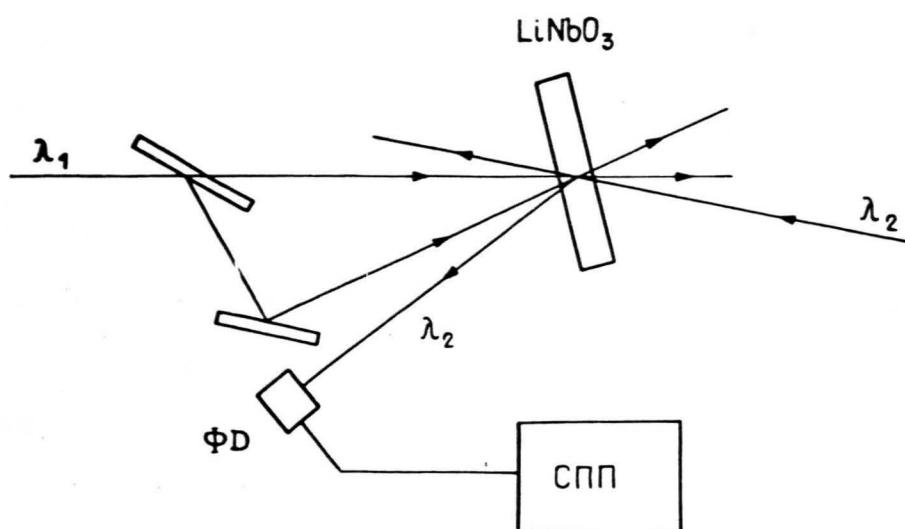


Рис. 2.13. Схема записи голограмм в кристаллах LiNbO_3 . Временная зависимость фототока, пропорционального мощности света дифрагированного голограммой, регистрируется самонишущим прибором СПП.

Во всех случаях установление стабильной температуры контролировалось по измерению изменений двулучепреломления. Погрешность при определении абсолютных величин температуры кристалла во всех случаях не превышала ± 1 К.

2.7. Голографическая методика

Голограммы записывались светом аргонового лазера, а временная зависимость дифракционной эффективности (η) регистрировалась при помощи света с длиной волны 632,8 нм и фотодиода, фототок которого фиксировался самопишущим прибором. В работе использовалась симметричная оптическая схема (рис. 2.13). Поляризацию считывающего и записывающего световых лучей при помощи вращателя поляризации можно было менять. Параметры использованной в работе голографической установки приведены в диссертации А.О.Озолса [154] .

Г л а в а 3

КИНЕТИКА И ПРОСТРАНСТВЕННОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ФОТОРЕФРАКЦИИ В КРИСТАЛЛАХ $LiNbO_3$ И $LiTaO_3$

3.1. Кинетика фоторефракции

Для исследований кинетики ФР в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ использовались поляризационно-оптическая и голографическая методики (см. главу 2). На рис. 3.1 приведены временные зависимости дифракционной эффективности, полученные на кристалле $LiNbO_3 - Fe$ (0,1 вес.%).

С помощью поляризационно-оптического метода с автоматической компенсацией можно получить прямую запись временной зависимости $\delta\Delta n$. В отличие от голографического метода, который чувствителен к величине модуляции показателя преломления с определенной пространственной частотой, поляризационно-оптический метод регистрирует изменения двулучепреломления в освещенном объеме кристалла. Благодаря этой особенности поляризационно-оптическим методом можно исследовать распределение изменений двулучепреломления в окрестности облученной области, однако этот метод требует более высокой стабильности температуры образца во время измерений, так как изменение температуры на 1 К создает $\delta\Delta n \approx 0,25 \cdot 10^{-4}$, а эта величина сравнима с величиной $\delta\Delta n$ создаваемой эффектом ФР.

На рис. 3.2 приведены временные зависимости $\delta\Delta n$, полученные на $LiNbO_3 - Fe$ (0,1 вес.%) при температуре 115 К в фокусированном пучке света. Скорость нарастания $\delta\Delta n$ и величина ста-

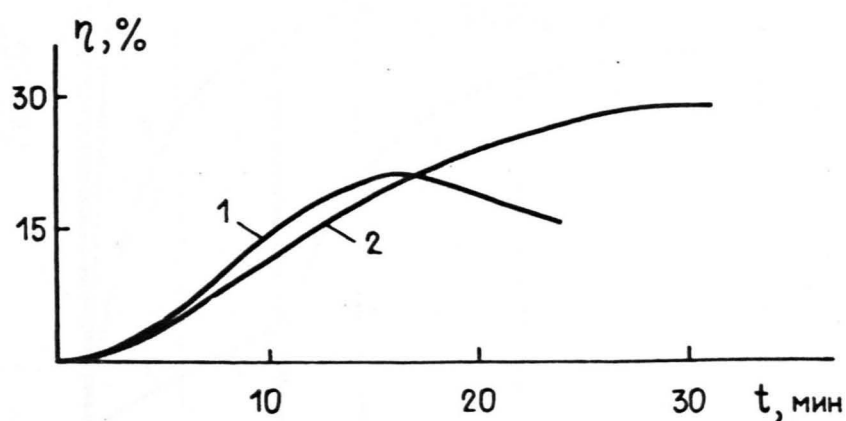


Рис. 3.1. Временная зависимость дифракционной эффективности в $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес.%), толщиной 0,22 мм, на длине волны считывающего света 632,8 нм с обыкновенной поляризацией. Запись производилась светом с длиной волны 514,5 нм с необыкновенной (1) и обыкновенной (2) поляризациями, интенсивности света записывающих пучков $0,4 \text{ Вт.см}^{-2}$.

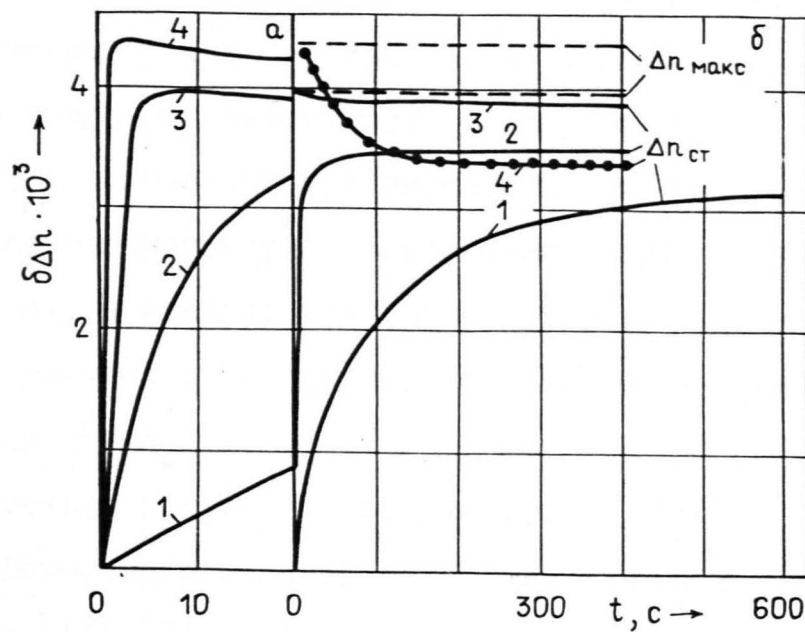


Рис. 3.2. Зависимости $\delta n_{ст}$ от интенсивности света ($\lambda = 496,5$ нм) в кристалле $LiNbO_3 - Fe$ (0,1 вес.%). При температуре 115 К; 1 - 0,3; 2 - 3,0; 3 - 300,0; 4 - 10^4 Вт.см $^{-2}$.

ционарных значений ($\delta n_{ст}$) зависит от интенсивности света. При больших интенсивностях света в начале облучения наблюдается быстрый рост δn , а потом значительно медленнее δn падает на некоторую величину, зависящую от интенсивности падающего света (рис. 3.2, кривые 3, 4).

Подобным образом интенсивность воздействующего света влияет и на кинетику δn в кристаллах $LiTaO_3-Fe$. На рис. 3.3 приведены временные зависимости δn кристалла $LiTaO_3-Fe$ (0,3 вес.%), полученные при интенсивности света 6 Вт/см^2 (диаметр сфокусированного луча в кристалле около 15 мкм) и разных температурах. Понижение температуры увеличивает в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ величины стационарных значений ФР и время, за которое достигается $\delta n_{ст}$.

Рассмотрим полученные результаты по кинетике ФР, основываясь на феноменологической теории аномального фотовольтаического эффекта (АФЭ) [2], который в настоящее время считается основной причиной возникновения ФР в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ (см. раздел I.3.3). Освещение всего кристалла или его части приводит к накоплению электрических зарядов противоположного знака на противоположных гранях кристалла (вдоль оптической оси) или на противоположных сторонах освещенной области соответственно. Плотность тока, создающего электрическое поле в освещенной области кристалла, определяется выражением (I.I2), а величина стационарного поля - выражением (I.I4). Кинетика формирования и разрушения ФР в таком приближении связана с временем диэлектрической релаксации (см., например, [60, 108, 154, 153])

$$\tau = \frac{\epsilon \epsilon_0}{\sigma_T + \sigma_F} \quad (3.1)$$

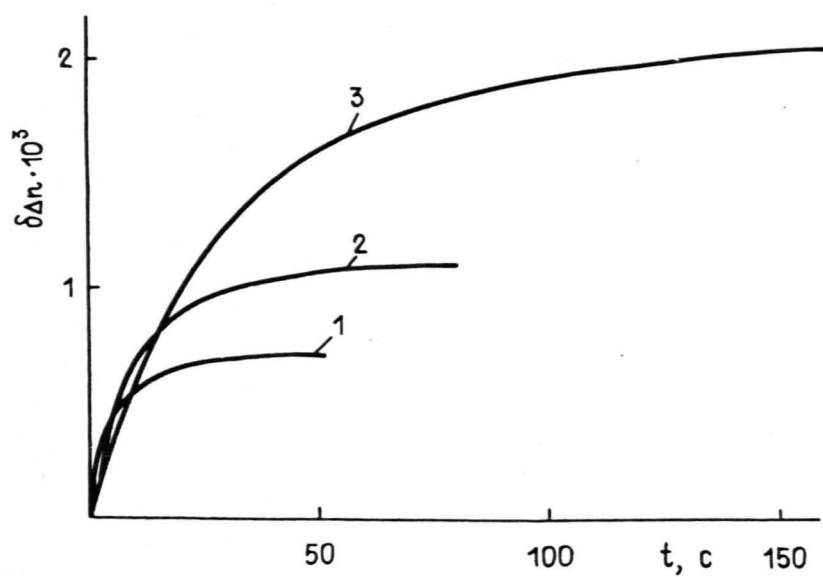


Рис. 3.3. Кинетика δn в кристалле $LiNbO_3 - Fe$ (0,3 вес.%) при разных температурах: 1 - 293 К; 2 - 250 К; 3 - 143 К. Интенсивность света 6 Вт.см^{-2} , длина волны - 514,5 нм.

Используя (3.1), (1.14) и (1.2), можно написать зависимость $\delta\Delta n$ от времени:

$$\delta\Delta n = \frac{m K \alpha I}{\epsilon_T + \epsilon_\phi} (1 - e^{-t/\tau}) . \quad (3.2)$$

Как видно из (3.2) и (3.1), важную роль в кинетике ФР играет проводимость освещенной области кристалла. Остановимся на некоторых проблемах, связанных с кинетикой ФР. Одна из проблем — это влияние концентрации акцепторных центров. Уже Чен [12] показал, что для создания $\delta\Delta n \approx 10^{-3}$ (величина, близкая к максимально достижимой при комнатной температуре в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$) необходима концентрация акцепторных центров около $4 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$. Такая величина является небольшой для реальных кристаллов и, по-видимому, концентрация акцепторов и доноров не определяет непосредственно стационарные и максимальные величины фоторефракции. Связь между этими величинами и дефектами кристаллов осуществляется через ϵ_T , ϵ_ϕ и K , как это следует из выражений (3.1) и (3.2).

В работе [153] рассматривались процессы ФР в предположении, что в кристаллах $LiNbO_3 - Fe$ имеются два вида разных по глубине акцепторных центров. Эта модель позволяет объяснить некоторые экспериментальные факты, например, зависимость стационарных величин $\delta\Delta n_{ст}$ от интенсивности света и замеченную авторами [153] нелинейность зависимости тока короткого замыкания от интенсивности света. Ниже будет показано, что наши эксперименты по температурной зависимости ФР также указывают на существование двух разных по глубине видов центров захвата. Однако в работе [153] показано, что и модель механизма ФР с двумя цент-

рами захвата предполагает экспоненциальную зависимость $\delta\Delta n$ от времени.

Представляет интерес вопрос о влиянии электрического поля, созданного в процессе ФР, на параметры анизотропных примесных центров, благодаря которым создается это поле (см. раздел I.3.3). Хотя величина E_{CT} достигает значительной величины (100 кВ/см), авторы [32] указывают, что эта величина гораздо ниже внутрикристаллических электрических микрополей и практически не влияет на потенциал анизотропных центров.

Рассмотрим влияние на кинетику ФР неравномерности освещения объема кристалла. Для создания ФР необходимо, чтобы часть падающего света поглощалась кристаллом, а это означает, что по глубине проникновения лазерного света в кристалл освещенность будет падать, $I = I_0 e^{-\alpha h}$. Так как величины фототока и фотопроводимости зависят от интенсивности освещения, то, имея в виду (3.1), (3.2), от глубины проникновения света будет зависеть как скорость возникновения $\delta\Delta n$, так и величина $\delta\Delta n_{CT}$.

Кроме того, с увеличением изменений показателей преломления в освещенной области кристалла растет и отклонение падающих лучей, и благодаря этому пучок света расширяется. Это отклонение начинается уже с передней плоскости кристалла и на выходе из кристалла диаметр светового пучка с ростом $\delta\Delta n$ непрерывно увеличивается, а это приводит к еще большему уменьшению интенсивности света с увеличением глубины проникновения. Динамика такой зависимости $\delta\Delta n$ продемонстрирована в работе [27].

Обычно в исследованиях ФР используется одномодовое лазерное излучение с гауссовым распределением интенсивности в пучке. В данном случае интенсивность освещения зависит не только от

глубины проникновения света в кристалл, но и от расстояния рассматриваемой точки до центра светового пучка. В работе [121] анализировалась кинетика ФР в предположении, что эффект ФР обусловлен аномальным фотоволтаическим эффектом, а интенсивность света в пучке имеет гауссово распределение, эффекты расфокусировки света не учитывались. Оказалось, что в данном случае нельзя получить аналитическое выражение для временной зависимости величины электрического поля в центре пучка, а проведенный в работе [121] численный расчет методом сеток показал, что временная зависимость не является экспоненциальной.

Из вышеизложенного следует, что в случае гауссова распределения интенсивности в пучке выражение (3.2) не будет строго выполняться. Однако можно подобрать такие условия эксперимента, при которых неравномерность освещения и отклонение световых лучей минимальны, и приближенно проверить характер временной зависимости $\delta\Delta n$. В таком случае следует использовать световую полосу с равномерным освещением и тонкие образцы с небольшим поглощением. При освещении образца световой полосой с равномерным распределением интенсивности электрические заряды будут накапливаться на краях освещенной полосы кристалла, а отклонение лучей будет наблюдаться только на краях полосы. Если ширина световой полосы сравнима или больше толщины образца, то можно ожидать, что отклонение световых лучей на краях полосы будет слабо влиять на среднюю интенсивность света в освещенной области.

Выражение (3.2) можно представить в следующем виде:

$$\rho_n\left(\frac{\delta\Delta n_{CT}}{\delta\Delta n_{CT} - \delta\Delta n}\right) = \tilde{\tau}^{-1}t \quad . \quad (3.3)$$

Используя экспериментально полученные величины $\delta\Delta n$ и $\delta\Delta n_{ст}$, можно построить зависимость $\ln\left(\frac{\delta\Delta n_{ст}}{\delta\Delta n_{ст} - \delta\Delta n}\right)$ от времени t , которая в случае справедливости выражения (3.2) будет линейной.

Такая проверка показала, что временная зависимость $\delta\Delta n$ полученная на кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ номинально чистых и с примесью Fe при соблюдении выше указанных условий эксперимента (световая полоса с равномерным освещением и тонкие образцы), описывается выражением (3.2). На рис. 3.4 приведены зависимости $\ln\left(\frac{\delta\Delta n_{ст}}{\delta\Delta n_{ст} - \delta\Delta n}\right)$ от времени, полученные на кристалле $LiTaO_3-Fe$ (0,3 вес.%). В измерениях использовалась оптическая схема с регистрирующим лучом ($\lambda = 632,8$ нм) и вторым лучом ($\lambda = 514,6$ нм), который создавал $\delta\Delta n$ (см.рис. 2.6). Световая полоса создавалась при помощи оптической щели и объектива (см.раздел 2.5). Если $\delta\Delta n$ создается фокусированным светом с гауссовым распределением интенсивности света в пучке, то линейной зависимости $\ln\left(\frac{\delta\Delta n_{ст}}{\delta\Delta n_{ст} - \delta\Delta n}\right)$ от времени не получается (рис. 3.5, экспериментальные величины $\delta\Delta n$ и $\delta\Delta n_{ст}$ взяты из рис. 3.3), и выражение (3.2) в этом случае несправедливо. Еще более сложная временная зависимость $\delta\Delta n$ получается при больших интенсивностях света (рис. 3.2). Экспериментально были установлены некоторые особенности взаимодействия интенсивного света ($I > 10$ кВт/см²) с кристаллом. Выключение освещения на несколько минут после достижения стационарного состояния приводило к увеличению $\delta\Delta n$, однако после включения света опять наблюдалось падение значения $\delta\Delta n$ а стационар устанавливался с прежним значением $\delta\Delta n_{ст}$. Эти особенности кинетики ФР при больших интенсивностях света можно

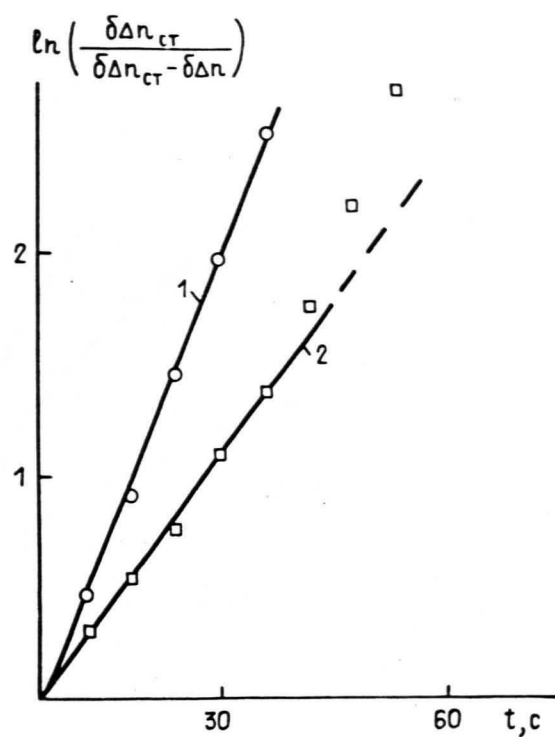


Рис. 3.4. Проверка кинетики $\delta \Delta n$ в кристалле $\text{LiNbO}_3 - \text{Fe}$ (0,3 вес.%), показывающая ее экспоненциальный характер. Интенсивность света 3 Вт.см^{-2} (1) и $1,5 \text{ Вт.см}^{-2}$ (2), длина волны - $514,5 \text{ нм}$. Ширина световой полосы $0,3 \text{ мм}$.

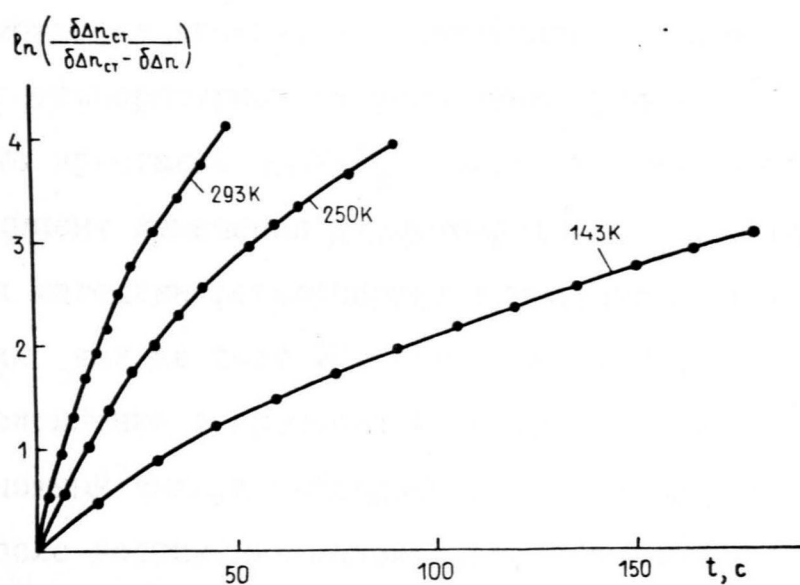


Рис. 3.5. Проверка кинетики $\delta \Delta n$ в LiTbO_3 -
- Fe (0,3 вес.%) при освещении
кристалла гауссовым пучком света
интенсивностью 6 Вт.см^{-2} и длиной
волны - 514,5 нм.

объяснить нагревом кристалла, вызванным поглощением световой энергии. Как будет показано далее (глава 5), величина $\delta\Delta n_{CT}$ при постоянной интенсивности света в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ зависит от температуры. В кристалле $LiNbO_3-Fe$, исследования которого при температуре 115 К приведены на рис. 3.2, в области температур 100 - 150 К $\delta\Delta n_{CT}$ слабо зависит от температуры и можно заключить, что медленное падение $\delta\Delta n$ (рис. 3.2) не вызвано температурной зависимостью процессов ФР. Выше было отмечено, что кристаллы $LiNbO_3$ имеют значительный температурный коэффициент изменения двулучепреломления, а поляризационно-оптическая методика регистрирует суммарное изменение двулучепреломления как за счет ФР, так и за счет нагрева. Изменения двулучепреломления в процессе ФР и при нагреве кристалла имеют противоположный знак, и наблюдаемое медленное уменьшение величин $\delta\Delta n$ после достижения максимального значения (рис. 3.2) может быть объяснено нагревом кристалла. Предполагая, что величина уменьшения $\delta\Delta n$ вызвана только температурной зависимостью двулучепреломления, из рис. 3.2 находим, что температура кристалла в освещенной области возросла примерно на 40 К. Величину повышения температуры можно оценить и при помощи данных о теплопроводности кристалла и величины поглощаемой световой энергии. Предположим, для приблизительной оценки, что в пластинке из $LiNbO_3-Fe(0,1 \text{ вес.}\%)$ освещается цилиндр с диаметром светового луча и вся освещенная область нагревается равномерно. В таком случае для оценки степени нагрева этой области кристалла можно использовать формулу для стационарного теплового потока через цилиндрическую стенку Q (за цилиндрическую стенку принимается неосвещенная область образца) [162] :

$$Q = \frac{2\pi \ell H}{\ln(D_2/D_1)} \Delta T, \quad (3.4)$$

где ℓ - длина цилиндра; H - теплопроводность (для LiNbO_3 $H = 4 \text{ Вт.м}^{-1}\text{.град}^{-1}$); D_1 и D_2 - внутренний и наружный диаметры цилиндрической стенки; ΔT - разница температур внутренней и наружной стенок цилиндра. За величину наружного диаметра можно принять размер всей пластинки (0,7 см), кроме того на рис. 3.2 кривая 4 имеет кинетику предполагаемого процесса нагрева, и D_2 можно оценить по критерию $4at_1 \approx (D_2 - D_1)^2$, где t_1 - время, за которое наступает стационар; a - коэффициент температуропроводности (для LiNbO_3 $a = 0,013 \text{ см}^2\text{.с}^{-1}$). Эта оценка дает $D_2 \approx 2,0 \text{ см}$ и показывает, что разумно $\overset{D_2}{\text{приравнять}}$ к размерам образца.

В стационаре тепловой поток из освещенной области кристалла будет равен поглощенной световой энергии:

$$Q = I(1 - e^{-\alpha h}) \pi \frac{D_1^2}{4}. \quad (3.5)$$

Для измерения представленного на рис. 3.2, кривая 4 имеем: $I = 10^4 \text{ Вт.см}^{-2}$, $\alpha = 27 \text{ см}^{-1}$, $h = \ell = 0,022 \text{ см}$, $D_1 = 0,002 \text{ см}$ и $D_2 = 0,7 \text{ см}$. Окончательно из (3.4) и (3.5) находим $\Delta T = 18 \text{ К}$. Полученная величина ΔT примерно на половину ниже, чем измеренная по температурной зависимости двулучепреломления, однако учитывая грубость оценки можно заключить, что нагрев освещенной области кристалла действительно определяет более медленное падение $\delta\Delta n$ после достижения $\delta\Delta n_{\text{макс}}$ в начале облучения кристалла интенсивным светом (рис. 3.2).

Величину изменения обыкновенного или необыкновенного показателей преломления (Δn_o ; Δn_e), созданную фоторефракцией,

можно измерить отдельно при помощи голографического метода. Величина Δn_0 находится из измеренных величин дифракционной эффективности (η) [154] :

$$\Delta n_0 = \frac{\lambda \cos \theta \arcsin \sqrt{\eta}}{\pi h} \quad (3.6)$$

На рис. 3.6 приведена зависимость $\ln\left(\frac{\Delta n_{0\text{ст}}}{\Delta n_{0\text{ст}} - \Delta n_0}\right)$ от времени. Величины $\Delta n_{0\text{ст}}$ и Δn_0 (обыкновенная поляризация света) были рассчитаны по (3.6) из экспериментальной зависимости η , приведенной на рис. 3.1. Как видно из рис. 3.6, при голографической записи изменение Δn_0 во времени описывается выражением (3.2). Отклонения экспериментальных зависимостей (рис. 3.4; рис. 3.6) от линейной могут быть вызваны неточностью определения $\Delta n_{0\text{ст}}$ (особенно это проявляется при больших η), а также рассеянием света (см. раздел 3.3) и искажениями элементарной голографической решетки, которые создаются при достижении стационарных величин дифракционной эффективности (рис. 3.7) (см. также [163]).

3.2. Распределения изменений двулучепреломления в окрестности освещенной области

В работе Чена [12] показано, что при воздействии круглого пучка лазерного света на кристаллы LiNbO_3 , LiTaO_3 (свет распространялся перпендикулярно оптической оси кристалла) в районе освещения образовывается анизотропная картина изменений показателей преломления (рис. 1.4). Из этой картины видно, что световой луч с гауссовым распределением интенсивности создает изменение $\delta \Delta n$, не повторяющее освещение

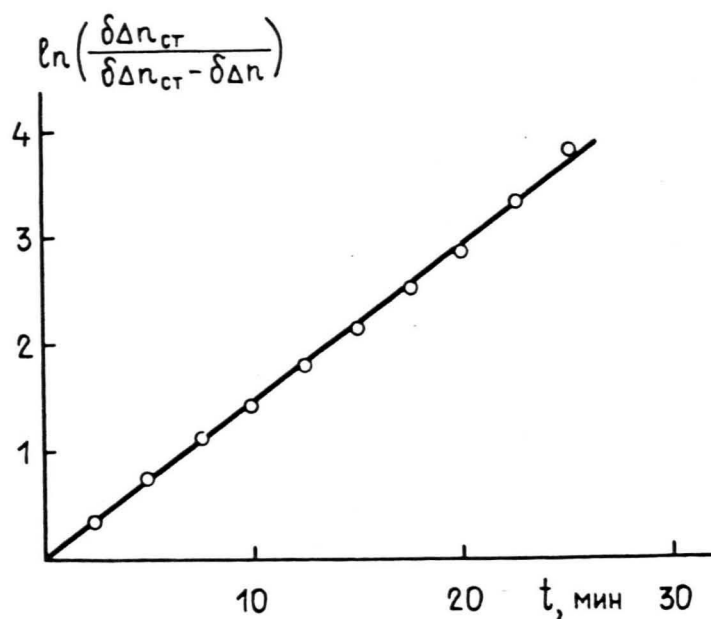


Рис. 3.6. Проверка кинетики Δn_0 в $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес.%), созданного во время записи элементарной голограммы. Длина волны считывающего света 632,8 нм. Запись производилась счетом с длиной волны 514,5 нм с обыкновенной поляризацией, интенсивность пучков 0,4 Вт.см⁻².

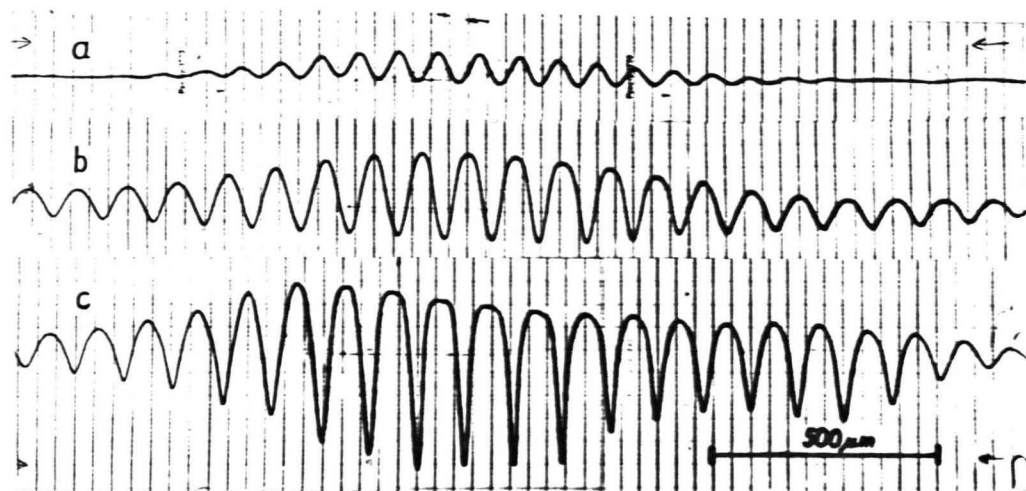


Рис. 3.7 Результаты сканирования тонких голограмм на $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес.%) толщиной 0,22 мм поляризационно-оптическим методом (см. раздел 2.2) при различных временах экспозиции: а – 1,5; δ – 5; б – 23 мин. Интенсивность света $0,15 \text{ Вт./см}^{-2}$, длина волны – 632,8 нм. Высота одной клетки соответствует $\delta \Delta n = 4,15 \cdot 10^{-5}$.

кристалла, т.е. наблюдается нелокальный характер ФР. Распределение $\delta\Delta n$ хорошо объясняется электрооптической природой ФР и переносом электрических зарядов вдоль оптической оси кристалла. На рис. 3.8 представлено пространственное распределение $\delta\Delta n$ по оптической оси кристалла $LiNbO_3$ в области воздействия двух лазерных световых пучков одинаковой мощности, центры которых отстоят друг от друга на расстояние двух освещенных диаметров пучков. Пик, появляющийся между освещенными областями, равен по величине положительным пикам. С учетом (1.2) можно утверждать, что электрическое поле, возникающее в неосвещенной области между лазерными пучками, равно по величине и противоположно по знаку полям, возникшим в области воздействия света лазера. Этот результат показывает, что как в освещенной, так и в неосвещенной области между пучками $\delta\Delta n$ определяется величиной перенесенного вдоль оптической оси электрического заряда.

Смещение распределения $\delta\Delta n$ относительно центра освещающего пучка наблюдалось в некоторых кристаллах $LiTaO_3$ [12] и $LiNbO_3$ [27]. Расчет (предполагалось, что в кристалле имеет место фотовольтаический эффект и имеются донорные и акцепторные центры) пространственного распределения заряда и внутреннего электрического поля в $LiNbO_3-Fe$ для ФР при воздействии света лазерного луча с гауссовым распределением интенсивности дает симметричное, не смещенное относительно центра светового пучка распределение электрического поля [121]. В наших измерениях отсутствовали какие-либо сдвиги и искажения формы кривой распределения $\delta\Delta n$ в пределах точности эксперимента (рис. 3.9). Иногда были получены разной величины отрицательные (по отношению к центральному пику) значения краевых пиков $\delta\Delta n$, однако

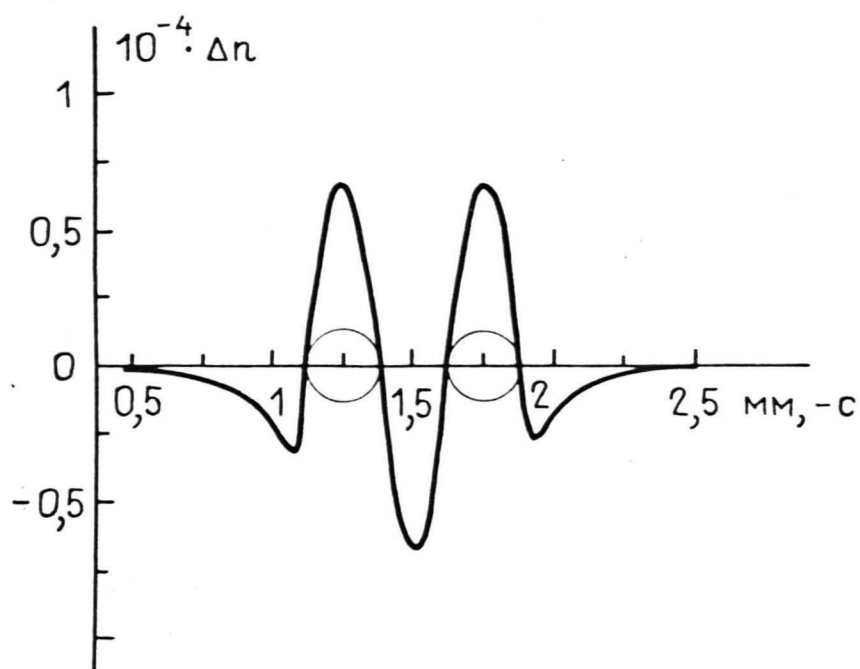


Рис. 3.8. Распределение Δn в направлении оптической оси кристалла LiNbO_3 при воздействии на него двух лазерных лучей (кружками обозначены освещенные области).

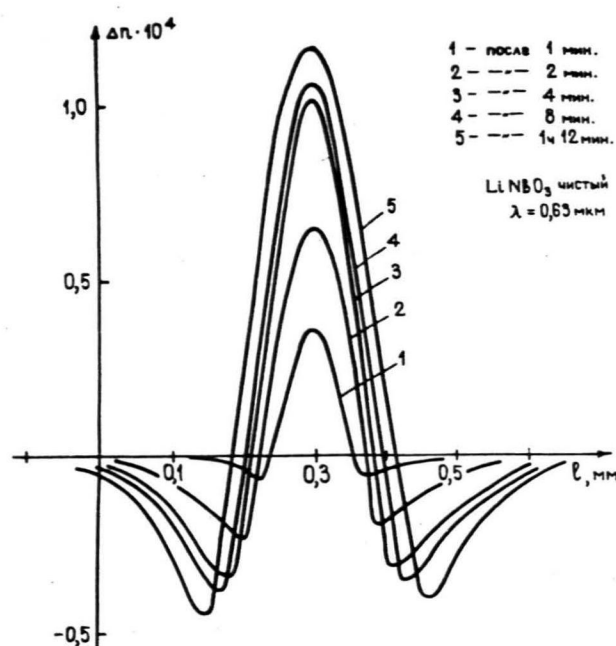


Рис. 3.9. Вид кривых распределения δn в LiNbO_3 в зависимости от длительности освещения.

исследование всей освещенной области кристалла многократным сканированием $\delta\Delta n$ вдоль оптической оси показало, что разница в величинах краевых пиков распределения $\delta\Delta n$ обусловлена неточностью сканирования освещенной области кристалла: зондирующий луч не проходил через центр освещенной области и одновременно направление сканирования составляло небольшой угол с оптической осью кристалла.

3.3. Зависящее от экспозиции анизотропное рассеяние когерентного света

При исследовании кинетики записи голограмм в тонких (0,3 мм) пластинках кристаллов $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес.%) и $LiTaO_3-Fe$ (0,1 вес.%) наблюдалось усиление рассеянного света, индикатриса которого отличалась от описанных в литературе [27, 117, 165-167, 170]. Основная мощность рассеянного света излучалась в направлении, близком к оптической оси кристалла с обеих плоскостей образца, как с передней, на которую падал лазерный свет, так и с задней плоскости. Эффект наблюдался также при облучении кристаллов одним пучком света. Опыты на образцах различной толщины показали, что с увеличением толщины кристаллов индикатриса рассеяния изменяется и при наблюдении этого эффекта на экране, который ориентирован перпендикулярно световому пучку, получается описанная в литературе картина рассеяния. Однако и на толстых образцах наблюдается усиление рассеяния в направлениях, близких к оптической оси кристалла.

Исследования этого эффекта показали, что он имеет голографическую природу. Падающий свет и рассеянный неоднородностями кристалла свет интерферируют между собой, из-за фоторефракции

записывается дифракционная решетка, а благодаря эффекту перекачки создается усиление рассеянного света [117, 170]. Наши исследования также хорошо согласуются с этим механизмом усиления анизотропного рассеяния света.

В исследованиях этого эффекта измерялись интенсивности проходящего (I_t), отраженного (I_r) и рассеянного света (I_s) в зависимости от угла падения θ и угла рассеяния α (рис. 3.10), а также зависимость рассеяния света от поляризации и длины волны (457,9; 488; 514,5 и 632,8 нм).

Временные зависимости интенсивности проходящего I_t , рассеянного I_s и отраженного I_r света, полученные на кристалле $LiNbO_3$ -Fe = 0,07 вес.%) толщиной $h = 0,25$ мм с проводящим покрытием (на обеих поверхностях нанесен слой In_2O_3) приведены на рис. 3.11. В зависимости $I_s(t)$ наблюдается характерный первый максимум и одновременно соответствующий минимум в $I_t(t)$, но в дальнейшем корреляция между зависимостями $I_s(t)$ и $I_t(t)$ уменьшается. Для образца без проводящего слоя In_2O_3 общий характер зависимостей $I_s(t)$, $I_t(t)$ и $I_r(t)$ такой же, как для образца с проводящим слоем, однако временная зависимость указанных величин осложняется явлением поверхностного пробоя (см. раздел 4.2).

В рассеянном свете на экране наблюдаются темные и светлые полосы, которые в начальной стадии рассеяния отсутствуют, и наиболее четко видны после 1 - 1,5 минут облучения кристалла лазерным светом ($\lambda = 514,5$ нм, $I_0 = 0,5$ Вт.см⁻², рис. 3.12). Изменение угла θ (от 0° до 60°) приводит к уменьшению интенсивности рассеянного света (приблизительно в 5 раз), но индикатор рассеяния остается связанной с геометрией кристалла.

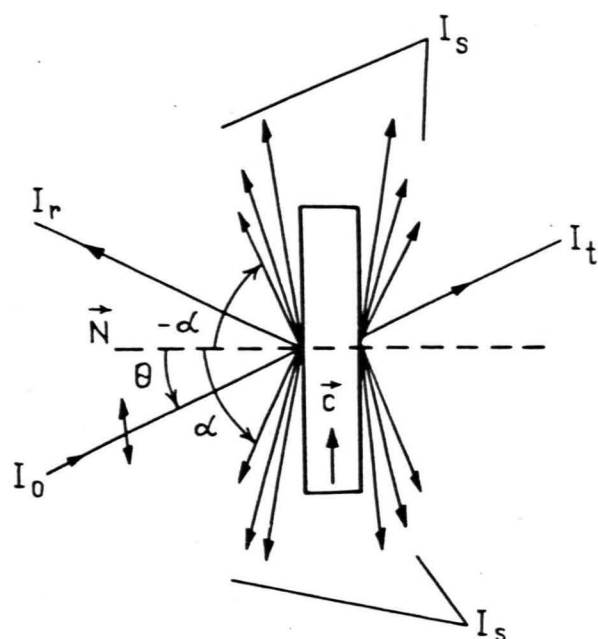


Рис. 3.10. Схема возбуждения фоторефракции и рассеяния света в кристаллах: $\vec{c}$ — оптическая ось, E — направление электрического вектора световой волны (поляризации света), θ — угол падения ($\vec{N}$ — нормаль к поверхности); α — угол между оптической осью ($\vec{c}$) и направлением наблюдения рассеянного света.

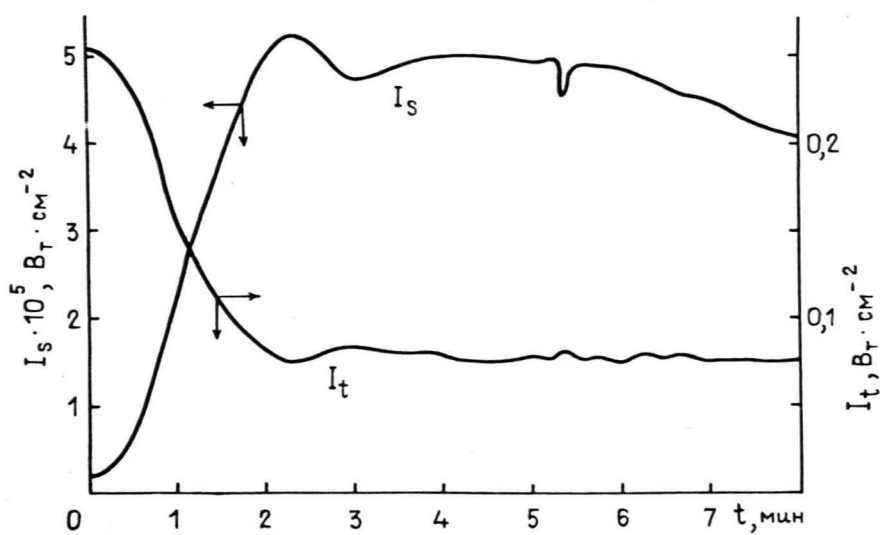


Рис. 3.II. Кинетика рассеянного (I_s) и проходящего света (I_t) в образце № 2, $I_o = 0,5 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$, $\lambda = 488 \text{ нм}$, $E_{\text{свет}} \parallel \vec{e}$.

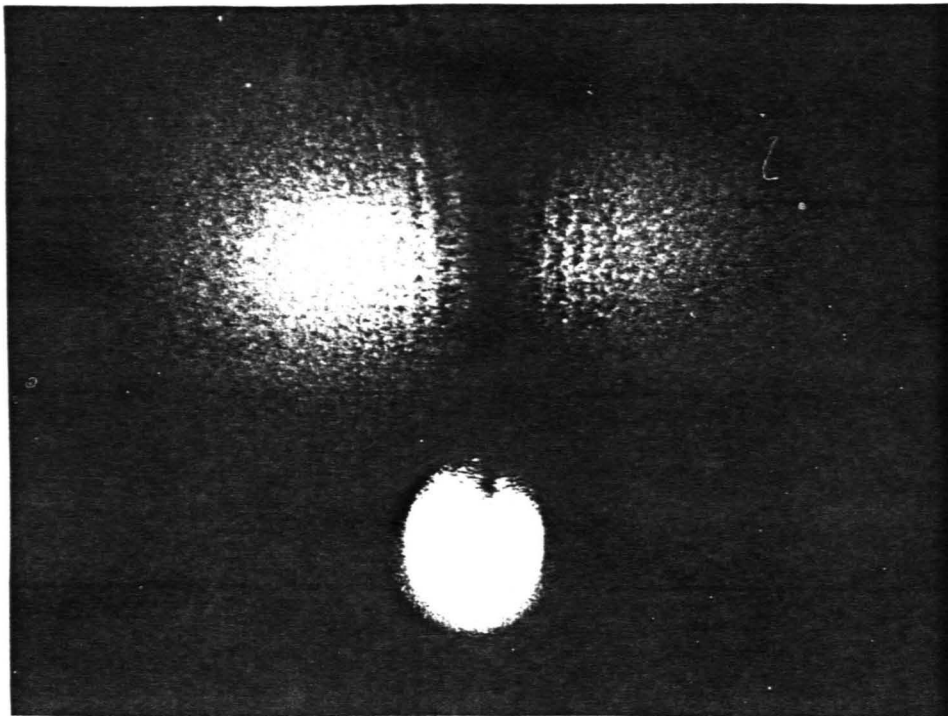


Рис. 3.12. Анизотропное рассеяние когерентного света в кристалле $LiNbO_3-Fe$ (0,07 вес.%), толщиной 0,2 мм. Рассеянный свет освещает экран (верхняя часть снимка). Изображение кристалла (светлое пятно в нижней части снимка) размытое, так как объектив фотоаппарата сфокусирован на экран. Лазерный пучок света падает перпендикулярно на пластинку из $LiNbO_3-Fe$ с правой стороны.

Усиленное анизотропное рассеяние, созданное интенсивным когерентным светом, сохраняется примерно такое же время, как и записанная голограмма. В дальнейшем, по аналогии с голографической терминологией, процесс создания усиленного анизотропного рассеяния будем называть записью, а исследование рассеяния при помощи пучка ослабленной интенсивности на образцах с созданным эффектом - считыванием.

О том, что усиленное рассеяние света обусловлено пространственной интерференционной решеткой, свидетельствует исчезновение усиленного рассеяния, если при считывании изменяется угол θ (меньше чем на 1°). Также при изменении длины волны считывающего луча на несколько нм усиленное рассеяние света исчезает и для его восстановления необходимо изменить на некоторую величину угол падения считывающего света, при этом усиленное рассеяние восстанавливается только с одного конца кристалла (в направлении оптической оси). Например, в $LiNbO_3$ -Fe после записи светом с длиной волны $\lambda = 514,5$ нм, усиленное рассеяние возникало в считывающем свете с $\lambda = 488$ нм при изменении угла падения θ на $1,5^\circ$ ($-1,5^\circ$), а рассеивался свет соответственно в направлении, близком к -90° (90°). Если длина волны записи короче чем считывающая, то при считывании на более длинной волне также усиленное рассеяние появляется только с одного конца кристалла, но в противоположную сторону (при прежних направлениях поворота кристалла). Эти результаты являются наглядным доказательством того, что пространственная интерференционная решетка создана плоской волной (падающий свет) и сферической волной (рассеянный неоднородностями кристалла свет).

Рассеяние света в кристаллах $LiNbO_3$ -Fe является резко анизотропным и при $E_{свет} \parallel \vec{c}$ примерно в 7 раз выше, чем при

$E_{\text{свет}} \perp \vec{c}$. Это различие согласуется с различием дифракционных эффективностей при соответствующих поляризациях света [169] и подтверждает фоторефрактивную природу этого явления. Анизотропия усиленного рассеяния также создается благодаря особенностям фоторефракции в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3 . Как известно, эффективно в этих кристаллах возникает интерференционная решетка, плоскости которой ориентированы перпендикулярно оптической оси кристалла (см., например [12]). Отметим, что из-за достаточно большого значения показателя преломления кристаллов LiNbO_3 плоскости решетки, рассеивающие свет под углом 80° , ориентированы под углом около 13° ($\theta = 0^\circ$) к направлению оптической оси кристалла. По-видимому, значительная часть рассеянного света из-за полного внутреннего отражения не выходит из образца, а поглощается в нем ($\alpha = 25 \text{ см}^{-1}$, $\lambda = 514 \text{ нм}$). Об этом свидетельствует увеличение поглощенной кристаллом световой мощности во время записи. В начале записи, когда усиленное анизотропное рассеяние отсутствует, поглощенная кристаллом мощность света (Φ_a) определялась как разница между падающей мощностью (Φ_0) и суммой отраженной (Φ_r), прошедшей (Φ_t) и полной рассеянной мощностей света (Φ_s) $\Phi_a = \Phi_0 - (\Phi_r + \Phi_t + \Phi_s)$. После записи измеренная величина поглощенной мощности (Φ_a^s) оказывается заметно больше, чем определенная в начале $\Phi_a^s > \Phi_a$. Например, для кристалла $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ (0,07 вес.%) толщиной $h = 0,025 \text{ см}$ имеем $\Phi_a = 7,8 \text{ мВт}$, а $\Phi_a^s = 13,25 \text{ мВт}$.

Увеличение поглощенной световой энергии не может быть вызвано изменением коэффициента поглощения кристалла, так как в LiNbO_3 только с одной примесью железа поглощение при воз-

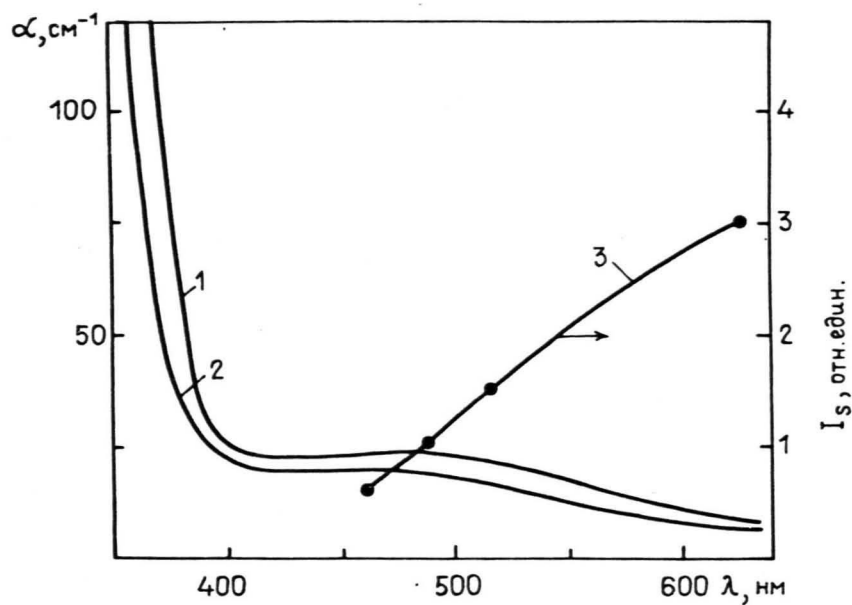


Рис. 3.13. Спектры поглощения кристалла $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес%):

1 - поляризация света перпендикулярная оптической оси; 2 - поляризация параллельна оптической оси; 3 - спектральная зависимость максимальных величин I_S при постоянной интенсивности возбуждающего света.

действии света с длиной волны 514 нм изменяется слабо, кроме того увеличение поглощенной световой энергии не наблюдается при облучении кристалла некогерентным светом в той же спектральной области.

Наблюдаемое в эксперименте увеличение эффективности усиления рассеяния с ростом длины волны света (рис. 3.13) качественно согласуется с одновременным уменьшением коэффициента поглощения и увеличением угла полного внутреннего отражения.

Хотя усиление анизотропного рассеяния света является нежелательным для оптических регистрирующих материалов, оно, благодаря простой методике наблюдения, может быть использовано для исследования некоторых свойств фоторефракции кристаллов $LiNbO_3$, $LiTaO_3$ и др.

Г л а в а 4

ВЛИЯНИЕ ВНЕШНЕГО ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ НА ПАРАМЕТРЫ ФОТОРЕФРАКЦИИ И ПОВЕРХНОСТНЫЙ ПРОБОЙ

4.1. Влияние внешнего электрического поля

В большинстве предложенных механизмов ФР в ниобате и танталате лития (см. раздел 1.3) предполагается, что во время освещения кристаллов светом в направлении их оптической оси происходит перемещение электрических зарядов, и этот процесс является причиной изменения показателей преломления кристаллов. Можно ожидать, что внешнее электрическое поле в зависимости от направления будет способствовать или препятствовать перемещению электрических зарядов и в результате параметры ФР будут зависеть от приложенного к кристаллу электрического поля. В механизме Чена предполагается существование в кристалле внутреннего электрического поля, направленного вдоль полярной оси кристалла, и автор [12], прилагая к кристаллу внешнее поле, определил величину предполагаемого внутреннего электрического поля в $LiNbO_3$ (70 кВ/см).

В работе [3] исследовалось влияние внешнего электрического поля на фототок и $\delta\Delta n$ в кристаллах $LiNbO_3$ и было показано, что величины электрических полей, компенсирующих фототок или $\delta\Delta n$, зависят от термической обработки и чистоты кристалла. Авторы [3] отмечают широкий диапазон величин внутреннего элект-

рического поля (от 180 кВ/см до 8 кВ/см). Величины компенсирующих электрических полей в $LiNbO_3$ оказались значительными, и для их определения авторы [3, 12] применили экстраполяцию, принимая, что зависимость фототока или $\delta\Delta n$ от величины внешнего поля линейная.

Интерес представляет зависимость компенсирующих $\delta\Delta n$ электрических полей от интенсивности света, так как в случае существования внутреннего электрического поля в кристалле (механизм Чена [12]), величина компенсирующего поля не должна зависеть от интенсивности света ($\epsilon_T \ll \epsilon_\phi$). С другой стороны, фотовольтаический механизм ФР [2] предсказывает зависимость компенсирующих полей от интенсивности света.

В наших исследованиях ФР в кристаллах $LiNbO_3$ во внешнем электрическом поле применялся поляризационно-оптический метод (см. раздел 2, там же об электродах и определении величины электрического поля).

В номинально чистых образцах $LiNbO_3$ внешнее электрическое поле величиной до 20 кВ/см эффективно влияет на параметры ФР. В этих кристаллах в зависимости от величины и направления внешнего электрического поля меняется не только величина $\delta\Delta n_{ст}$ но и знак индуцированного $\delta\Delta n_{ст}$ (рис. 4.1).

Выбором величины и направления внешнего электрического поля можно добиться того, что двулучепреломление в кристаллах ниобата и танталата лития при включении интенсивного света (25 Вт/см^2) не меняется в центральной части освещенной области. Однако при сканировании этой области тонким измерительным лучом наблюдались неоднородности $\delta\Delta n$, созданные интенсивным светом. Устранить эти неоднородности тщательным выбором величин-

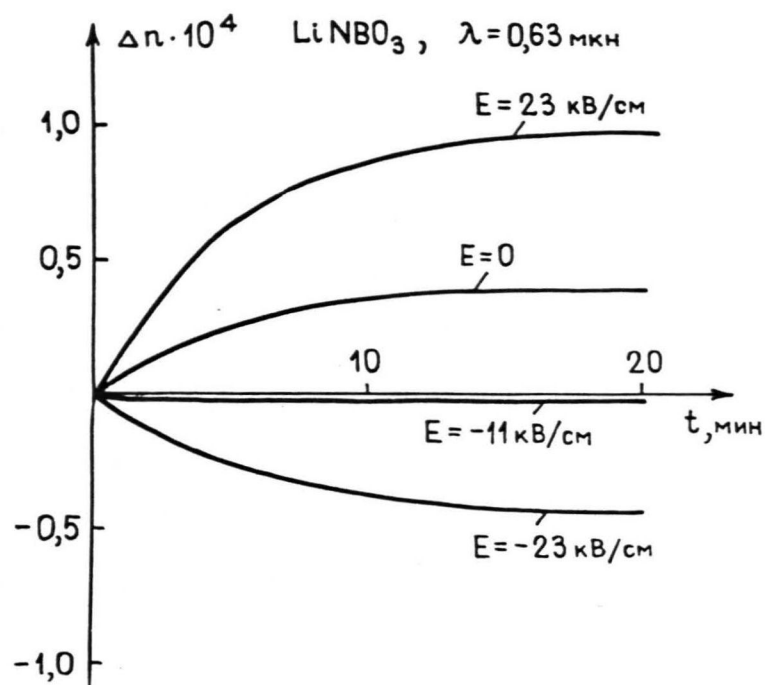


Рис. 4.1. Влияние внешнего электрического поля на величину фоторефракции в LiNbO_3 .

ны внешнего электрического поля оказалось невозможным. При изменении знака $\delta\Delta n$ во внешнем поле по сравнению со знаком $\delta\Delta n$ в отсутствии поля, вид распределения $\delta\Delta n$ в освещенной области кристалла существенно изменялся (рис. 4.2). В перевернутой кривой распределения $\delta\Delta n$ наблюдается провал в центральной части, а величина этого провала зависит от интенсивности индуцирующего света.

Наблюдаемый эффект обращения кривой распределения $\delta\Delta n$ при воздействии света на кристалл во внешнем электрическом поле обусловлен влиянием этого поля на направление миграции носителей заряда. Подобное изменение характера распределения доказывает, что конечное изменение двулучепреломления, возникающее в $LiNbO_3$ под действием света, вызвано внутренним электрооптическим эффектом, связанным с возникновением пространственного заряда, как и предполагалось Ченом [12]. Подчеркнем, что имеется в виду только корреляция $\delta\Delta n$ с возникшим при освещении кристалла внутренним электрическим полем, но не механизм Чена полностью (см. раздел I.3.1).

Измерения значений компенсирующих эффект фотопреломления электрических полей (E_K) в номинально чистом $LiNbO_3$ показали зависимость E_K от интенсивности света (рис. 4.3). Подобные результаты были получены и на кристаллах $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес.%) (рис. 4.4). Как в номинально чистых, так и в кристаллах $LiNbO_3$ с примесью железа величина E_K зависит от температуры образцов, а E_{CT} , определенное по экспериментальной величине $\delta\Delta n_{CT}$ и электрооптическим коэффициентам (см. раздел I.1.2), близко по величине к E_K (таблица 4.1).

Таблица 4.1

Зависимость $E^{\text{комп}}$ и $E_{\text{стац}}$ от интенсивности света и температуры

Кристалл	Интенсивность света, Вт. см ⁻²	Температура, К	$E^{\text{комп}}$ кВ. см ⁻¹	$E_{\text{стац}}$, кВ. см ⁻¹
$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$	18	293	170	145
$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$	1,8	293	125	102
$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$	0,8	293	95	76
$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$	0,06	293	65	52
LiNbO_3	30	293	15	11,5
LiNbO_3	30	353	3,6	2,7
LiNbO_3	30	373	2,6	1,8

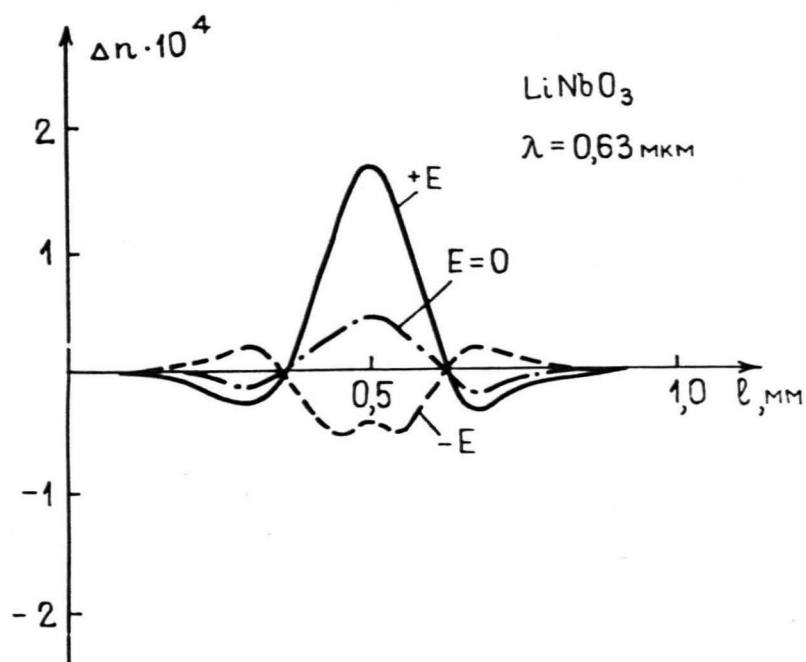


Рис. 4.2. Вид кривых распределения Δn в LiNbO_3 при различных направлениях внешнего электрического поля, приложенного к кристаллу во время освещения.

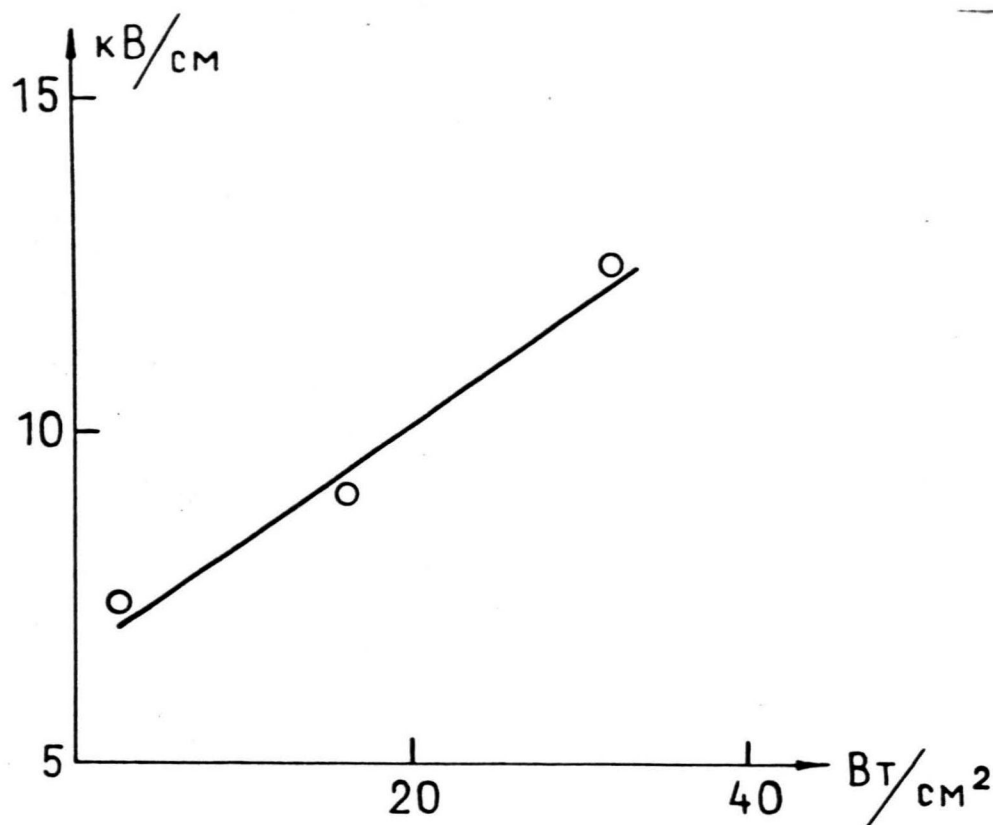


Рис. 4.3. Зависимость величины внешнего электрического поля, компенсирующего фоторефракцию в кристалле LiNbO_3 , от интенсивности света.

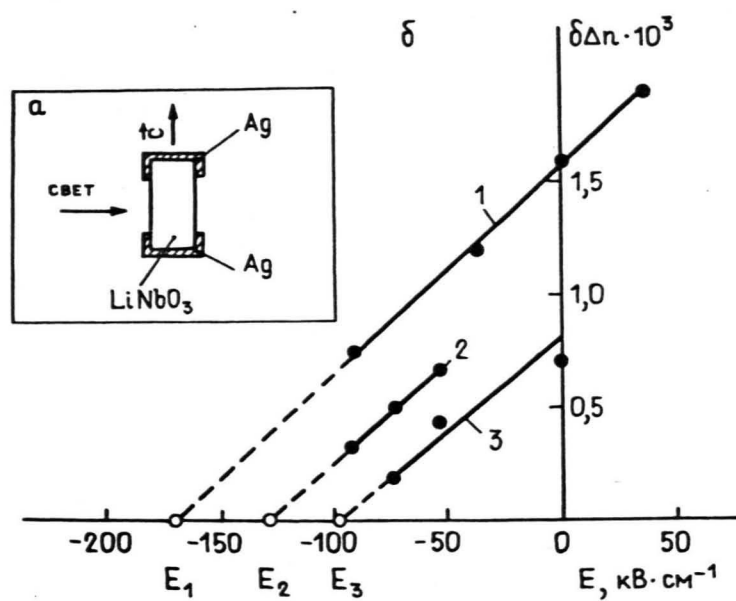


Рис. 4.4. Влияние внешнего электрического поля и интенсивности света на величину $\delta n_{\text{ст}}$ в кристалле $\text{LiNbO}_3 - \text{Fe}$ (0,1 вес.%): а - схема эксперимента и конфигурация электродов; б - при интенсивностях света: 1 - 18; 2 - 1,8; 3 - 0,8 $\text{Вт} \cdot \text{см}^{-2}$.

Приведенные результаты по исследованию E_K лучше всего можно объяснить на основе феноменологического механизма фото-волтаического эффекта, предложенного Глассом и сотр. [2]. Этот механизм определяет выражение для стационарного электрического поля, которое создается в освещенной области кристалла $\longrightarrow$ при его облучении светом во внешнем электрическом поле (E_B). Из (I.14) имеем:

$$E_{CT} = \frac{K \propto I}{\epsilon_T + \epsilon_\phi} - E_B \quad (4.1)$$

Из определения E_K следует, что в случае $E_B = E_K$, стационарное значение изменения двулучепреломления равняется нулю и, следовательно, $E = 0$. Из этого условия и (4.1) находим $E_K = \frac{K \propto I}{\epsilon_T + \epsilon_\phi}$. Как видим, E_K совпадает по величине с E_{CT} определенного в $LiNbO_3$ без внешнего электрического поля при прочих равных условиях. Например, для определения E_K при выбранной интенсивности света нужно облучить кристалл и измерить $\delta\Delta n_{CT}$. Далее по величине $\delta\Delta n_{CT}$ и электрооптическим коэффициентам определить E_{CT} , которое численно и равняется E_K .

При большой величине внешнего электрического поля, превышающего E_K , но с тем же направлением, будет наблюдаться обратная зависимость $|\delta\Delta n|$ от интенсивности света, т.е. увеличение интенсивности света приведет к уменьшению $|\delta\Delta n_{CT}|$. Эта особенность зависимости $|\delta\Delta n_{CT}|$ от интенсивности света следует и из выражения (4.1). При условии $\frac{K \propto I}{\epsilon_T + \epsilon_\phi} < E_B$ увеличение I уменьшает E_{CT} , и, следовательно, $\delta\Delta n_{CT}$. На рис. 4.5 приведены распределения $\delta\Delta n$ в освещенной области кристалла (сканирование вдоль оптической оси кристалла), измеренные после достижения стационарного состояния. Видно, что в центре освещен-

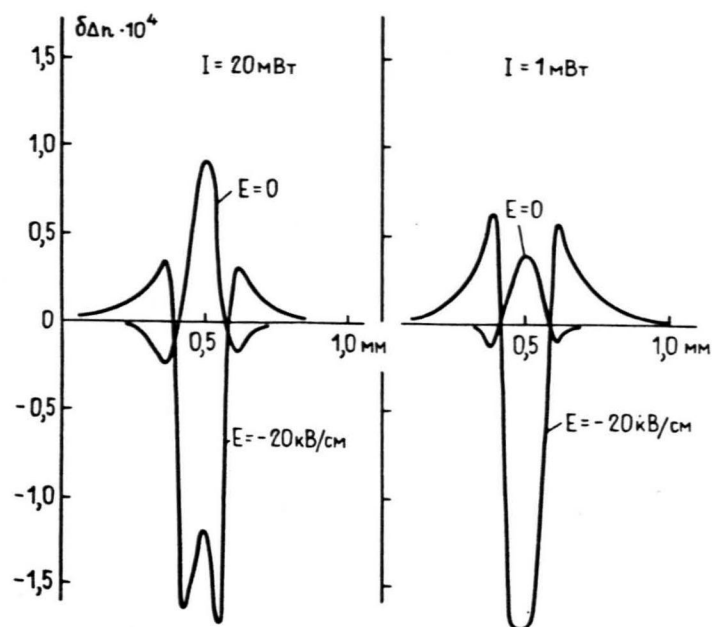


Рис. 4.5. Влияние внешнего электрического поля на величину $\delta \Delta n_{\text{ст}}$ при двух различных интенсивностях света.

ной области кристалла, величина $\delta n_{\text{ст}}$ при мощности лазерного пучка 20 мВт, меньше чем при мощности пучка, равной 1 мВт.

Зависимость E_K от интенсивности света объясняет провал в перевернутой кривой распределения δn и невозможность полной компенсации δn . В наших измерениях фоторефракции использовался лазерный свет с гауссовым распределением интенсивности в пучке. Так как $E_K = f(I)$, а интенсивность света в лазерном пучке является функцией координат, то E_K тоже является функцией координат в однородном внешнем электрическом поле невозможно полностью компенсировать δn , которое создано световым пучком с гауссовым распределением интенсивности.

4.2. Поверхностная рекомбинация электрических зарядов и фоторефракция в кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$

При исследовании временных зависимостей δn в легированных железом (0,1 вес.%) кристаллах LiNbO_3 были обнаружены спонтанные скачкообразные уменьшения величины δn . Резкие изменения во временной зависимости δn или дифракционной эффективности голограмм наблюдались и другими авторами [1, 2, 40, 118, 161]. В литературе это явление интерпретируется по-разному: в некоторых работах предполагается, что скачки в $\delta n(t)$ обусловлены пробоем поверхности кристалла, в других работах предполагается, что скачкообразные изменения δn могут быть вызваны эффектами переполаризации кристалла в больших электрических полях, которые создаются в процессах ФР (эффект Баркгаузена [118]).

Нами было замечено, что величины $\delta\Delta n_{\text{макс}}$ и $\delta\Delta n_{\text{мин}}$ в одном и том же образце зависят от диаметра светового луча, его интенсивности и окружающей кристалл атмосферы (рис. 4.6).

При замене воздушной атмосферы в камере на аргоновую (пробойное напряжение в аргоне по величине соответствует 1/4 пробойного напряжения воздуха), величина $\delta\Delta n_{\text{макс}}$ уменьшается, а частота пробоев увеличивается (рис. 4.6, кривые 2 - 5). (Так как величина $\delta\Delta n_{\text{макс}}$ и $\delta\Delta n_{\text{мин}}$ в определенных пределах колеблется, на рисунках указаны усредненные значения $\delta\Delta n_{\text{макс}}$, $\delta\Delta n_{\text{мин}}$ и временных интервалом между пробоями.) Пробой исчезает как при помещении кристалла в жидкий диэлектрик (кремнийорганическое масло), так и в сильный электролит (3 мол % раствор KCl в воде) (рис. 4.7 а). Пробой отсутствует также, если на обе стороны кристаллической пластинки нанесены проводящие покрытия (окись индия) (рис. 4.7 а).

При повышении температуры образцов уменьшается $\delta\Delta n_{\text{макс}}$ и $\delta\Delta n_{\text{мин}}$ и увеличивается частота повторения скачков (рис. 4.8). Аналогичные явления наблюдались также в кристаллах $LiNbO_3$ с большой концентрацией железа и в кристаллах $LiTaO_3-Fe$. Скачкообразное понижение значения $\delta\Delta n$ в кристаллах $LiNbO_3-Fe$ удалось заметить и после прекращения воздействия интенсивного света (рис. 4.7 в).

Полученные экспериментальные результаты показывают, что условия для скачков $\delta\Delta n$ развиваются на поверхности кристалла и определяются в основном окружающей кристалл средой. Учитывая электрооптическую природу ФР, можно сделать вывод, что скачки $\delta\Delta n$ создает рекомбинация разделенных светом зарядов, которая осуществляется в виде пробоя окружающей атмосферы на поверхности кристалла.

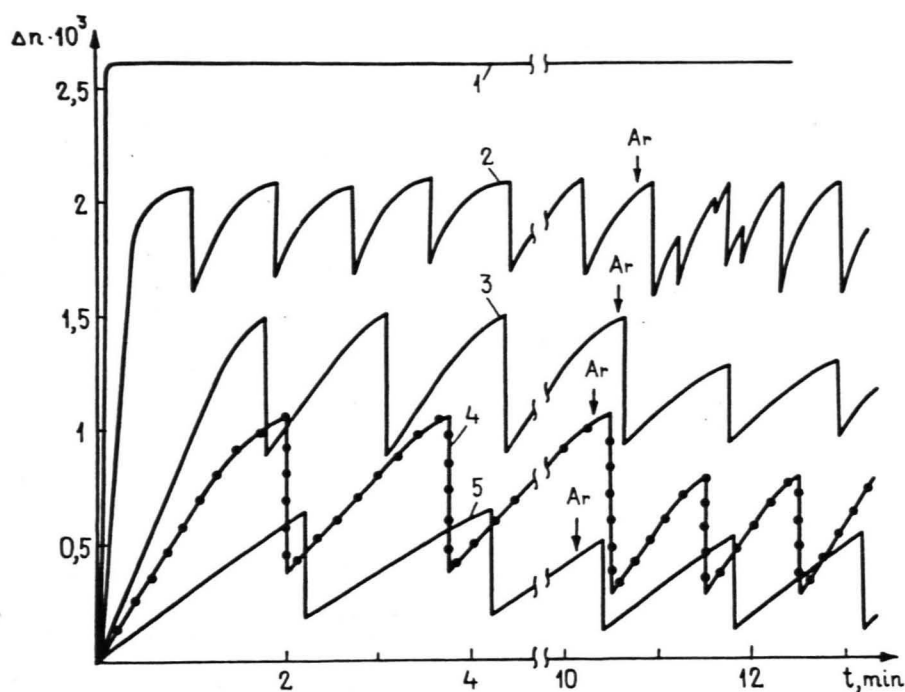


Рис. 4.6. Кинетика фоторефракции в кристаллах $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес.%) при воздействии света гелий-неонового лазера (632,8 нм) при различных диаметрах светового пучка и интенсивности света: 1 - 0,02 мм, 500 Вт.см^{-2} ; 2 - 0,25 мм, 30 Вт.см^{-2} ; 3 - 0,25 мм, $3,6 \text{ Вт.см}^{-2}$; 4 - 0,4 мм, 9 Вт.см^{-2} ; 5 - 0,8 мм, $3,6 \text{ Вт.см}^{-2}$. (стрелками указаны моменты замены воздушной атмосферы аргоновой).

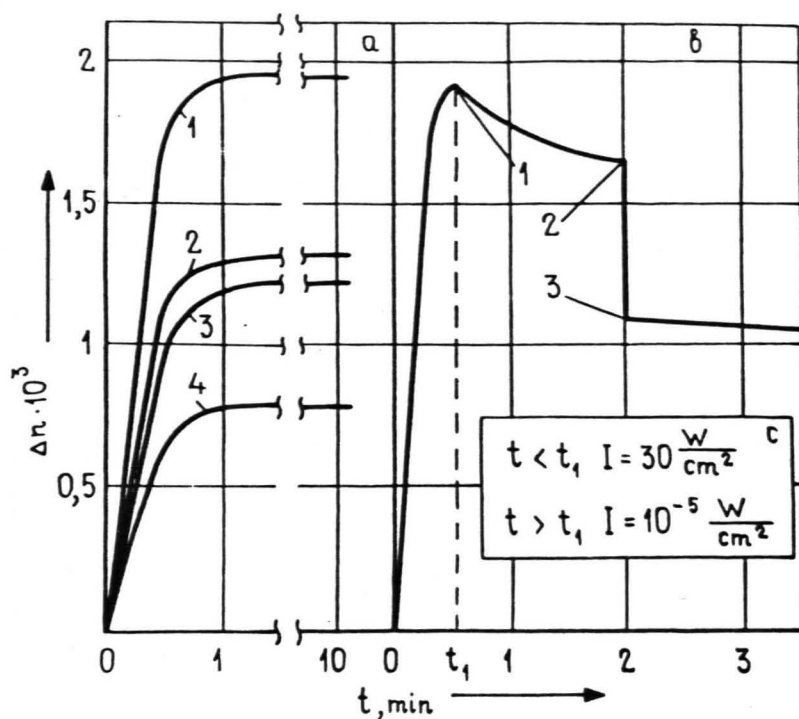


Рис. 4.7. Влияние окружающей кристалл среды на кинетику фоторефракции в $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ (0,1 вес.%):

- а) кристалл в кремниевом масле - 1, между прозрачными проводниками из SnO_2 - 2, в бидистилляте H_2O - 3 и в электролите из 3 мол% раствора KCl в воде - 4;
- б) наблюдение пробоя после выключения интенсивного света;
- в) интенсивности света, необходимые для создания и регистрации $\delta \Delta n$.

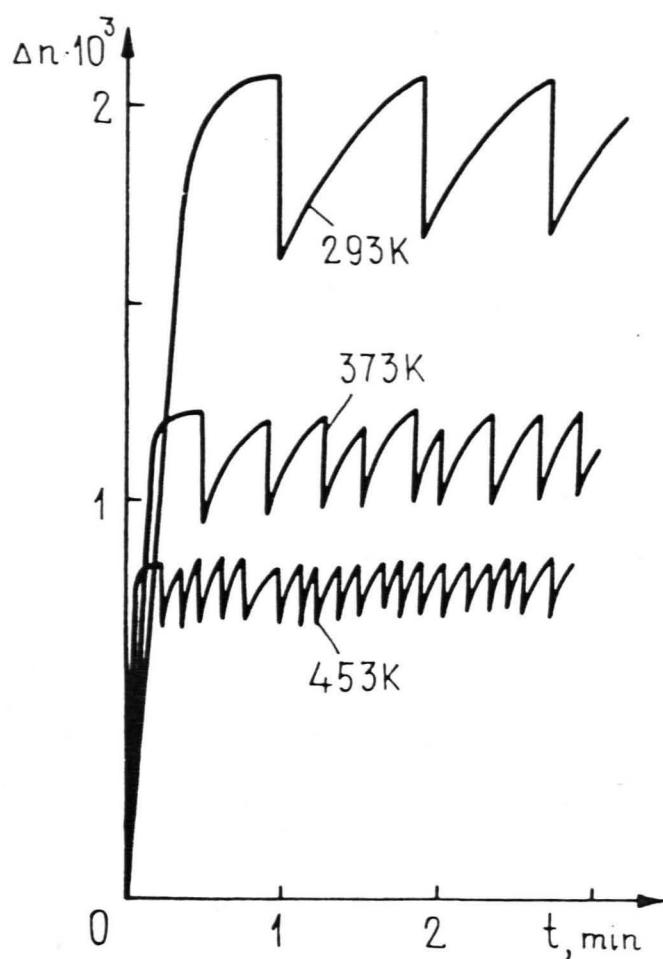


Рис. 4.8. Влияние температуры на кинетику фоторефракции в $\text{LiNbO}_3 - \text{Fe}$ (0,1 вес.%) при воздействии лазерного света ($\lambda = 632,8$ нм, $I = 30 \text{ Вт.см}^{-2}$, воздух).

Вид распределения $\delta\Delta n$ по диаметру воздействующего на кристалл луча лазера и соотношение между его положительной и отрицательной частью после скачка $\delta\Delta n$ (рис. 4.9) указывает, что рекомбинация происходит в центральной части пучка.

Возникновение скачков в $\delta\Delta n(t)$ качественно можно объяснить, основываясь на объемном фотовольтаическом механизме фоторефракции (см. раздел I.3.3). Из этого механизма следует, что при освещении кристалла светом в его объеме вдоль оси $\vec{c}$ протекает электрический ток и на краях освещенной области кристалла накапливаются заряды. Благодаря этому электрическое поле в освещенной области растет и изменяет $\delta\Delta n$. Максимальная величина этого электрического поля определяется интенсивностью света, введенными примесями в кристалл и его температурой (подробнее эти вопросы рассмотрены ниже). Численные значения созданного светом электрического поля можно оценить при помощи электрооптического эффекта по выражению (I.2). Такие оценки показывают, что в кристаллах ниобата и танталата лития с примесью железа (0,1 вес.%) величины созданных светом электрических полей значительно превышают величину поля пробоя воздуха. Для наглядности отметим, что для $LiNbO_3\text{-Fe}$ $\delta\Delta n = 1 \cdot 10^{-3}$ означает возникновение электрического поля величиной $E = 91$ кВ/см ($\lambda = 632,8$ нм).

По-видимому, часть электрических зарядов на краях освещенной области кристалла мигрирует из объема кристалла на его поверхности, и, когда возникшая величина электрического поля на поверхности кристалла достаточна для пробоя окружающей его атмосферы, происходит пробой и наблюдается скачок $\delta\Delta n$, так как после рекомбинации части заряда уменьшается общая величина электрического поля. Прямое экспериментальное доказательство

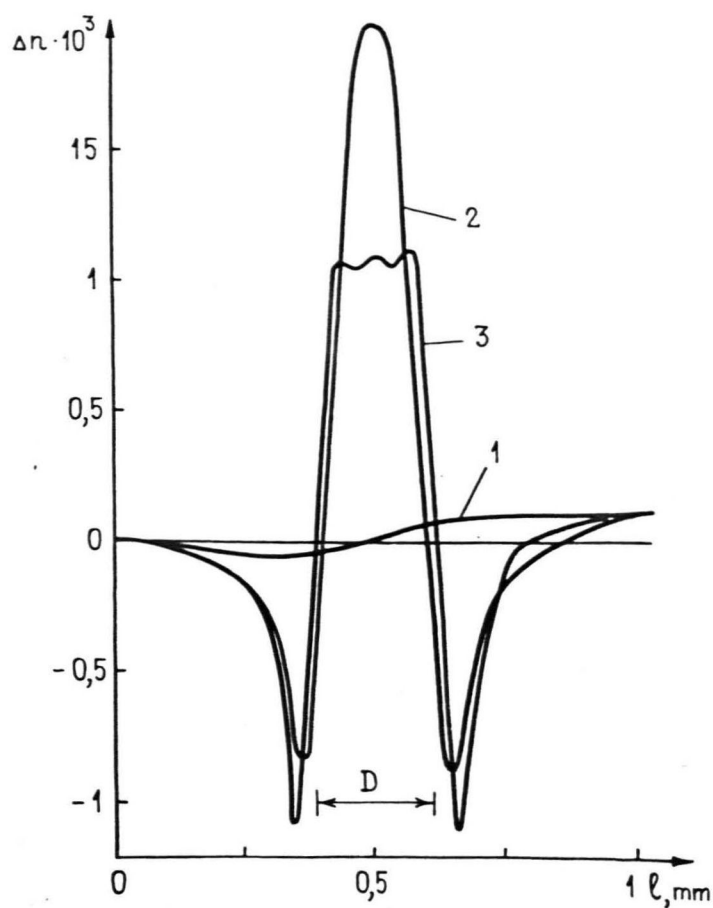


Рис. 4.9. Распределение $\delta\Delta n$ в кристалле $\text{LiNbO}_3 - \text{Fe}$ (0,1 вес.%) до воздействия интенсивного света (1), в начале освещения, пробой не наблюдался (2) и после пробоя (3).

эмиссии электронов из кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ при их облучении видимым светом получено в работах [155 - 157] .

Рассмотрим, каким образом влияет на временную зависимость $\delta\Delta n$ величина диаметра светового пучка и толщина исследуемого образца. Освещение плоскопараллельной пластинки из $LiNbO_3$ осуществлялось параллельным пучком лазерного света (рис. 4.10), диаметр пучка (D) варьировался при помощи телескопической системы. На рис. 4.6 приведены временные зависимости $\delta\Delta n$ полученные на пластинке $LiNbO_3$ -Fe(0,1 вес.%) толщиной $h = 0,22$ мм. Увеличение диаметра светового пучка понижает величины $\delta\Delta n_{\max}$ и $\delta\Delta n_{\min}$ (см., например, кривые 3 и 5 рис. 4.6). С увеличением диаметра светового пучка растет вклад в ФР той части электрических зарядов, которая находится близко к поверхностям кристалла. По-видимому, это увеличивает скорость рекомбинации разделенного заряда через поверхность кристалла (проводимость поверхности кристалла выше, чем объемная проводимость, см. раздел I.1.4), и в результате уменьшается скорость роста и максимальная величина $\delta\Delta n$. В случае большого диаметра светового пучка и малой толщины кристаллической пластинки процесс пробоя уничтожает сравнительно большую часть разделенных электрических зарядов, благодаря этому скачки $\delta\Delta n$ имеют большую амплитуду (рис. 4.6). При сравнительно небольшом диаметре светового пучка (см. рис. 4.6, кривая I получена при соотношении $D/h = 0,09$) даже значительная интенсивность света и большие значения $\delta\Delta n$ не вызывают заметных скачков $\delta\Delta n$. По-видимому, пробой атмосферы вблизи поверхности кристалла имеет место и при малом диаметре светового пучка, однако небольшое отношение D/h исключает заметное влияние поверхностных процессов

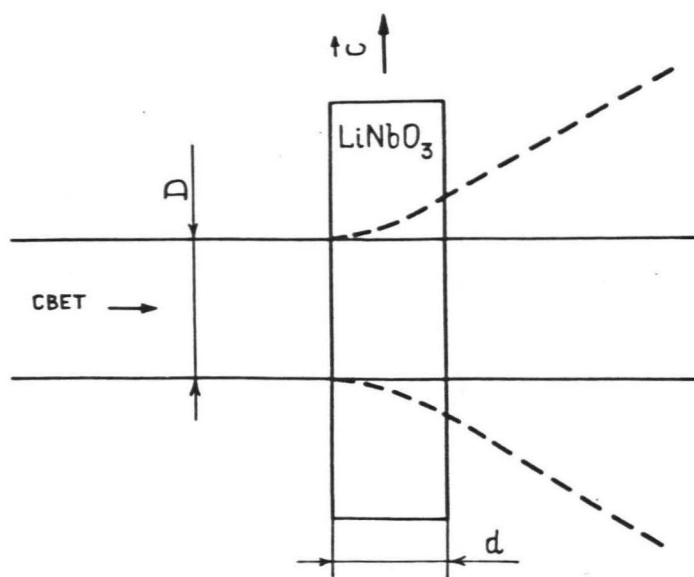


Рис. 4.10. Распространение лазерного света через кристалл, в котором наблюдается фото-рефракция.

на величину ΦP в объеме кристалла. Приведенные результаты указывают путь снижения влияния поверхностных свойств на объемные свойства ΦP в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$. Исключить пробой на поверхности кристалла можно при помощи помещения его в хороший диэлектрик (см. рис. 4.7) или в вакуум.

Увеличение темновой и фотопроводимости, которое имеет место при повышении температуры образца (см. раздел I.2.4), влияет и на параметры скачков $\delta \Delta n$ (рис. 4.8). По-видимому, увеличение частоты скачков при повышении температуры кристалла связано с ростом скорости выхода электрических зарядов из объема кристалла на его поверхность. Не исключено, что объемная проводимость кристалла также определяет локализацию пробоев в центральной части освещенного пятна (Рис. 4.8, гауссовое распределение интенсивности света в пучке), так как здесь проводимость кристалла выше.

Необходимым условием для образования пробоя является создание на поверхности кристалла такой напряженности электрического поля, которое превышает напряженность поля пробоя окружающей атмосферы. Освещение кристалла не является необходимым условием для пробоя, оно только создает большие электрические поля. На это указывает пробой после выключения интенсивного освещения (остается очень слабый регистрирующий $\delta \Delta n$ свет, см. рис. 4.7 в, с). По-видимому, в момент времени t_1 (рис. 4.7 в) не прекращается миграция электрических зарядов из объема на поверхность, хотя интенсивный свет отсутствует. Благодаря этому напряженность электрического поля на поверхности кристалла в интервале времени 1, 2 (рис. 4.7 в) увеличивается и достигает значения пробоя воздуха. В интервале 1, 2 (рис. 4.7 в) наблю-

дается падение значения $\delta\Delta n$, по-видимому, одновременно с ростом поверхностных зарядов происходит и их рекомбинация. На это указывает более медленная релаксация $\delta\Delta n$ после пробоя (интервал пробоя 2, 3; рис. 4.7 в), когда на одной стороне пластинки поверхностный заряд рекомбинировал и релаксация в большей степени определяется объемными свойствами кристалла.

Отметим, что на обеих освещенных сторонах кристаллической пластинки пробой должны создаваться с разной эффективностью. Это вытекает из того, что при выходе из кристалла световой пучок ослаблен поглощением кристалла и рассеивается из-за эффекта ФР (рис. 4.10, штриховой линией показан ход световых лучей после создания $\delta\Delta n$). В результате этого на передней и задней сторонах пластинки условия для пробоя отличаются. Экспериментально наблюдается серия пробоев, которая состоит из нескольких неглубоких скачков (небольшая разница между $\delta\Delta n_{\text{макс}}$ и $\delta\Delta n_{\text{мин}}$) и одного глубокого. Например, в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ (0,07 вес.%) такие серии состояли из трех неглубоких пробоев и одного более глубокого пробоя. Кристалл облучался пучком диаметром $D = 0,56$ мм лазерного света ($\lambda = 570$ нм, лазер на красителе). Для других длин волн серии несколько изменялись (2 - 4 неглубоких пробоя на 1 глубокий пробой), а частота пробоев зависела от длины волны падающего света и эта спектральная зависимость частоты пробоев коррелировала с фоторефрактивной чувствительностью S' . Величина S' определялась по кинетике ФР как производное $S' = \frac{\partial(\delta\Delta n)}{\partial(I \cdot t)}$ при малых $I \cdot t$.

На отсутствие повреждений или обращения спонтанной поляризации в освещенной области кристалла во время пробоя указывает возможность стирания ФР после наблюдения пробоя путем однородного освещения образца видимым светом.

В ы в о д ы

1. Приложением к кристаллам $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ внешнего электрического поля возможно управление величиной $\delta n_{ст}$
2. Величины внешних электрических полей, устраняющих эффект фоторефракции в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$, зависят от интенсивности падающего света, а также от температуры и химической чистоты кристаллов.
3. Влияние внешнего электрического поля на ФР подтверждает предположение о том, что фоторефракция в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ коррелирует с аномальным фотовольтаическим эффектом.
4. Явление спонтанного уменьшения δn во время облучения кристаллов $LiNbO_3-Fe$ и $LiTaO_3-Fe$ светом обусловлено процессами поверхностной рекомбинации в окружающей кристалл атмосфере.

Г л а в а 5

ЗАВИСИМОСТЬ ФОТОРЕФРАКЦИИ В КРИСТАЛЛАХ НИОБАТА И ТАНТАЛАТА ЛИТИЯ ОТ ИНТЕНСИВНОСТИ СВЕТА И ТЕМПЕРАТУРЫ

5.1. Исследование фоторефракции при больших интенсивностях света

В настоящее время многими авторами признано, что основной причиной возникновения ФР в кристаллах ниобата и танталата лития является фотовольтаический эффект (см. раздел I.3). Тем не менее существует ряд экспериментальных данных, которые не удается удовлетворительно объяснить на основе этого эффекта. В частности, из феноменологической теории фотовольтаического механизма ФР следует, что стационарные значения изменений двулучепреломления ($\delta n_{ст}$) с ростом интенсивности индуцирующего света должны насыщаться, т.е. стремиться к постоянной величине ($\delta n_{ст}^{max}$). Этот вывод следует из выражения для стационарного значения ФР (I.14), так как проводимость σ в освещенной области является суммой темновой σ_T и фотопроводимости $\sigma_f = \beta I$ [2], где β - коэффициент фотопроводимости. Из (I.14) и (I.2) получаем выражение для стационарного значения двулучепреломления

$$\delta n_{ст} = \frac{m K \propto I}{\sigma_T + \beta I} \quad (5.1)$$

где $m = 0,5(n_e^3 r_{33} - n_o^3 r_{13})$. Из (5.1) видно, что насыщение $\delta n_{ст}$ определяется соотношением между σ_T и σ_f . С ростом

интенсивности света I фотопроводимость линейно растет и, учитывая низкую темновую проводимость кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ уже при сравнительно небольших I выполняется условие $\sigma_T \ll \sigma_\phi$. По данным работы [24], в которой σ_T и σ_ϕ измерены прямым методом при температуре 293 К, в кристаллах $LiNbO_3-Fe$ (0,01 моль %) $\sigma_T = 3,4 \cdot 10^{-20} \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ и $\sigma_\phi = 8,6 \cdot 10^{-14} \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ ($I = 0,48 \text{ Вт/см}^2$). Такое же соотношение между σ_T и σ_ϕ получаем, сравнивая времена возникновения или стирания δn при освещении кристалла светом и времена релаксации δn в темноте. Например, при комнатной температуре и интенсивностях света $I - 10 \text{ Вт/см}^2$ времена, необходимые для насыщения δn составляют секунды или минуты, а время релаксации δn в слабо допированных кристаллах $LiNbO_3$ несколько месяцев, следовательно такое же соотношение (около 5 порядков) будет и между темновой проводимостью и фотопроводимостью. Если содержание железа в кристаллах $LiNbO_3$ превышает 0,18 вес.%, темновая проводимость резко возрастает по сравнению с кристаллами, в которых содержание Fe меньше (см. раздел I.I.3). Гласс с сотр. [2] приводят сравнение темновой проводимости и фотопроводимости в кристаллах $LiNbO_3-Fe$ (0,2 вес.%) и даже в этом кристалле с высокой темновой проводимостью соотношение между σ_T и σ_ϕ составляет два порядка ($I = 1 \text{ Вт/см}^2$). Таким образом, при интенсивностях света $I > 1 \text{ Вт/см}^2$ в кристаллах $LiNbO_3-Fe$ условия, когда $\sigma_T \ll \sigma_\phi$ действительно выполняются и из (5.1) находим

$$\delta n_{ст}^{max} = \frac{m K \alpha}{\beta} \quad (5.2)$$

Однако экспериментальные исследования, проведенные на номиналь-

но чистых и с примесью железа кристаллах $LiNbO_3$ показали заметную зависимость δn_{ct} от интенсивности света при $I > 1 \text{ Вт/см}^2$ [12, 27, 34, 145]. Для уточнения зависимости δn_{ct} от I нами исследовались кристаллы $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ с разной концентрацией примеси железа в диапазоне интенсивностей света 10^{-3} – 10^4 Вт/см^2 в непрерывном режиме излучения лазера [26, 160]. В экспериментах использовались плоскопараллельные пластинки монокристаллов $LiNbO_3$ и $LiNbO_3\text{-Fe}$ (0,1 и 0,3 вес.%) с размерами $7 \times 7 \text{ мм}^2$ и толщиной 0,19 – 0,31 мм. Монокристаллы $LiTaO_3$, $LiTaO_3\text{-Fe}$ выращивались в Харьковском ВНИИ монокристаллов методом Чохральского на установке "Донец-3" в инертной и окислительной атмосферах. Примесь вводилась в шихту в виде окиси железа в концентрации 0,03, 0,1 и 0,1 вес.%. Содержание железа в выращенных кристаллах определялось методом химического анализа (таблица 5.1). Содержание неконтролируемых микропримесей в шихте составляло не более $5 \cdot 10^{-4}$ вес.%.

Измерения ФР проводились фокусированным пучком света диаметром 15 мкм, что обеспечило минимальное влияние поверхностных эффектов на ФР в объеме кристалла (см. раздел 4.2).

Для определения поглощенной энергии возбуждающего света проводились измерения пропускания при выбранной длине волны и поляризации света (рис. 5.1 и 5.2).

Зависимость δn_{ct} от интенсивности света ($\lambda = 486,5 \text{ нм}$; $\lambda = 600 \text{ нм}$), измеренные на кристаллах $LiNbO_3$ и $LiNbO_3\text{-Fe}$ приведены на рис. 5.3, а на рис. 5.4 представлены подобные результаты, полученные на кристаллах $LiTaO_3$ и $LiTaO_3\text{-Fe}$ ($\lambda = 514,5 \text{ нм}$). Как в $LiNbO_3$, так и в $LiTaO_3$ общим является то, что при интенсивностях света $I > 1 \text{ Вт/см}^2$, δn_{ct} заметно уве-

Таблица 5.1

Характеристика объектов исследования

№ образца	Кристалл	Концентрация вес. %	Молярное отношение	$m(\lambda) = 0,5(n_e^3 n_{33} - n_o^3 n_{13}), 10^8 \text{ см. В}^{-1}$			макс. для $\delta n_{\text{ст}}^{-1} = f(I^{-1})$ по (3), Вт. см ⁻²
				457,9 нм	514,5 нм	632,8 нм	
1	LiTaO_3	-	0,953	1,3	1,22	1,18	-
2	LiTaO_3	-	0,965*	-	-	1,10	-
3	LiTaO_3	-	1,00	1,25	1,22	1,16	4000
4	$\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$	0,005	0,965	1,26	1,21	1,14	500
5	$\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$	0,06	0,965	-	1,18	1,14	200
6	$\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$	0,17	0,965	-	-	1,14	10

*) Кристалл выращен в окислительной атмосфере; все остальные - в инертной.

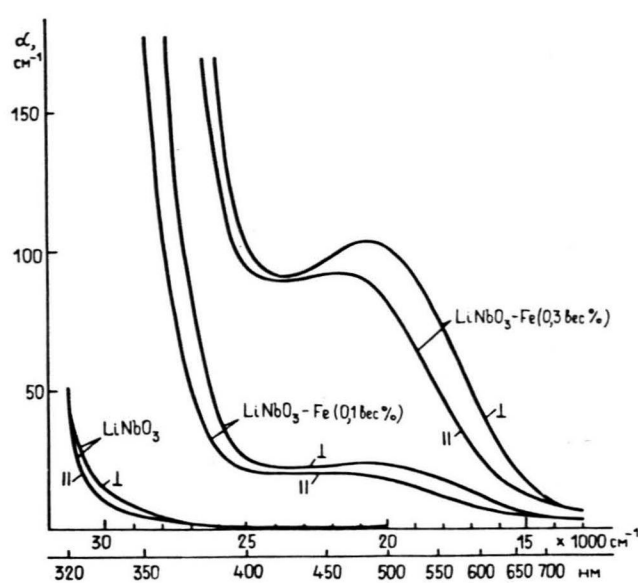


Рис. 5.1. Спектры поглощения кристаллов LiNbO_3 и $\text{LiNbO}_3 - \text{Fe}$.

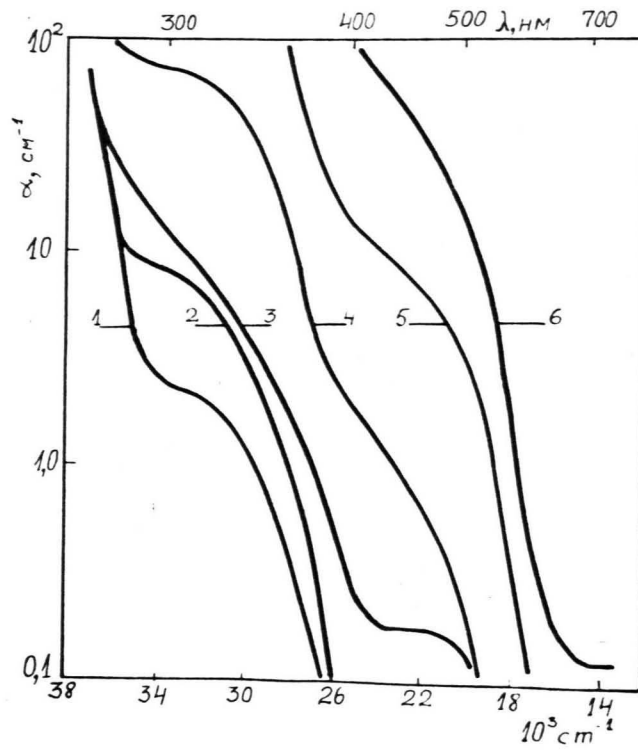


Рис. 5.2. Спектры поглощения кристаллов LiTaO_3 (1-3) и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$ (4-6) (см. таблицу 5.1)

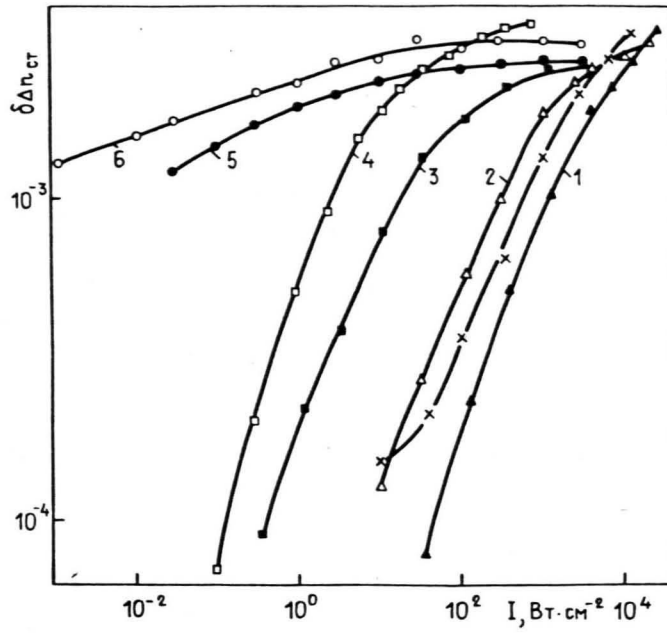


Рис. 5.3. Зависимость Δn_{cr} от интенсивности света для кристаллов $LiNbO_3$: 1,2 - без примеси; 3,4 - Fe 0,3 вес.%; 5,6 - Fe 0,1 вес.%; 1,3,5 - $\lambda = 600$ нм; 2,4,6 - $\lambda = 496,5$ нм; ---x---x--- с примесью меди 0,1 вес.% и $\lambda = 514,5$ нм.

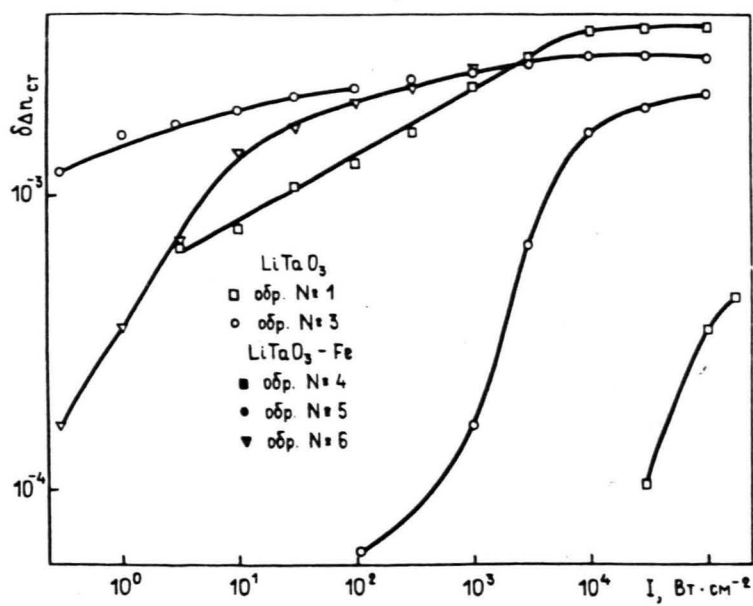


Рис. 5.4. Зависимость $\delta\Delta n_{ст}$ от интенсивности света для кристаллов $LiTaO_3$ и $LiTaO_3-Fe$ при длине волны 514,5 нм (характеристику образцов см. в табл. 5.1).

личивается с ростом интенсивности света, а насыщение $\delta n_{ст}$ начинается при интенсивностях света $10^2 - 10^3$ Вт/см² ($LiNbO_3$ рис. 5.3) и $10^3 - 10^4$ Вт/см² ($LiTaO_3$, рис. 5.4).

Из этих же зависимостей (рис. 5.3; 5.4) видно, что независимо от концентрации примеси железа как в $LiNbO_3$, так и в $LiTaO_3$ значения насыщения ФР близки между собой ($\delta n_{ст}^{max} \approx 3 \cdot 10^{-3}$). Эти особенности зависимости $\delta n_{ст}$ от интенсивности света в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ указывают на то, что $\delta n_{ст} = f(I)$ зависит не только от соотношения темновой и фотопроводимости. По-видимому, с ростом интенсивности света увеличивается K или же β_ϕ не является линейной функцией интенсивности света. В литературе имеются противоречивые данные о зависимости K и β_ϕ от I . Например, в работе [153] сообщается об измерениях фотовольтаического тока (без внешнего источника напряжения) на кристаллах $LiNbO_3-Fe$ (0,1 моль.%) в зависимости от интенсивности света. Полученные в этой работе результаты свидетельствуют, в отличие от других работ [2, 24, 27], что K увеличивается с ростом интенсивности. В работе [153] кроме того показано, что опубликованные Глассом и сотр. [15] экспериментальные данные по зависимости фотовольтаического тока от интенсивности света также свидетельствуют о росте K при увеличении I .

В работе [24] показано, что β_ϕ в кристалле $LiNbO_3-Fe$ (0,01 моль %) нелинейно зависит от I по закону $\beta_\phi \sim I^{0,6}$.

Из выражения (5.1) следует, что к увеличению $\delta n_{ст}$ в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ при повышении интенсивности света приводит как рост K с ростом I , так и зависимости $\beta_\phi \sim I^{0,6}$. Однако, если предположить, что K и β_ϕ имеют

указанную зависимость от I , δn_{CT} , определенное по выражению (5.1) должно непрерывно расти, а экспериментально наблюдается насыщение δn_{CT} от I . Возможно, что величину δn_{CT}^{max} определяют другие механизмы, которые становятся преобладающими при больших интенсивностях света. На это указывает нагрев кристалла при больших интенсивностях света (см. раздел 3.1) и большие величины электрических полей $E_{CT}^{max} \approx 240 \text{ кВ.см}^{-1}$, оцененные по δn_{CT} с использованием выражения (1.2). Повышение температуры кристаллов LiNbO_3 и LiTaO_3 уменьшает величины δn_{CT} (см. ниже раздел 5.3.2) и благодаря этому возрастающий нагрев освещенной области кристалла с ростом I будет ограничивать рост величины δn_{CT} . С другой стороны, не исключено, что величина $E_{CT}^{max} \approx 240 \text{ кВ.см}^{-1}$ отражает связь эффекта фоторефракции с сегнетоэлектрическими свойствами кристаллов LiNbO_3 и LiTaO_3 и не может превысить коэрцитивное поле (E_c) (в LiNbO_3 при $T = 293 \text{ К}$ $E_c \approx 300 \text{ кВ.см}^{-1}$ [164]). Такое предположение следует из особенности $\delta n_{CT} = f(I)$ для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ (0,1 вес. %) и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$ (0,1 вес. %). В этих кристаллах δn_{CT} уже при низких интенсивностях света, когда нагрев светом незначительный, имеет величину, близкую к δn_{CT}^{max} и слабо зависит от I (рис. 5.3 и 5.4).

5.2. Фотовольтаический механизм фоторефракции и зависимость δn_{CT} от интенсивности света

Из анализа зависимости $\delta n_{CT} = f(I)$ в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3 (см. раздел 5.1) следует, что выражение (5.1) не применимо для описания $\delta n_{CT} = f(I)$ в широком диапазоне интенсивностей света.

Выражение (5.1) можно преобразовать в следующее:

$$(\delta \Delta n_{ст})^{-1} = \frac{\sigma_T}{K \propto m} I^{-1} + \frac{\beta}{K \propto m} \quad (5.3)$$

и, если выражение (5.1) описывает зависимость $\delta \Delta n_{ст} = f(I)$, то в графике зависимости $(\delta \Delta n_{ст})^{-1}$ от I^{-1} экспериментальные точки должны укладываться на прямую линию, а пересечение этой прямой с осью $(\delta \Delta n_{ст})^{-1}$ даст величину $\beta/K \propto$, а $\text{tg} \alpha$ (α - угол между экспериментальной прямой и осью I^{-1}) определит величину $\sigma_T/K \propto$. Из этих двух величин можно найти отношение β/σ_T , и, предполагая, что σ_T не меняется с изменением длины волны света и зная величины $\propto(\lambda)$, можно определить отношение $K(\lambda_1)/K(\lambda_2)$.

Результаты такого исследования зависимостей $\delta \Delta n_{ст} = f(I)$ в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiNbO_3-Fe$ отражены на рис. 5.5 - 5.7 и в таблице 5.2. Как в кристаллах $LiNbO_3$ с большим содержанием железа, так и в номинально чистых образцах $LiNbO_3$ экспериментальные точки в определенном интервале интенсивностей света (для $LiNbO_3-Fe$ (0,3 вес.%) до 20 Вт.см^{-2} , а для $LiNbO_3$ до 10^4 Вт.см^{-2}) хорошо ложатся на прямую линию (рис. 5.5; 5.6) (статическое отклонение измеренных величин от прямой меньше для $LiNbO_3-Fe$ (0,3 вес.%), чем для $LiNbO_3$, так как благодаря малому времени сохранения ФР в сильнолегированном кристалле $LiNbO_3-Fe$, измерения на нем получены в одной и той же точке на образце), эти результаты доказывают, что выражение (5.1) при указанных интенсивностях света в кристаллах

Таблица 5.2

Константы ФР для кристаллов LiNbO_3 и $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$

λ , нм	K, отн. ед.	LiNbO_3		$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$		
		$\frac{\beta}{\epsilon_0}$, $\frac{\text{см}^2}{\text{ВТ}}$	α , см^{-1}	K, отн. ед.	$\frac{\beta}{\epsilon_0}$, $\frac{\text{см}^2}{\text{ВТ}}$	α , см^{-1}
600	I	$0,74 \cdot 10^{-3}$	0,011	I	0,13	42
496,5	I,2	$1,7 \cdot 10^{-3}$	0,028	6,3	1,3	99

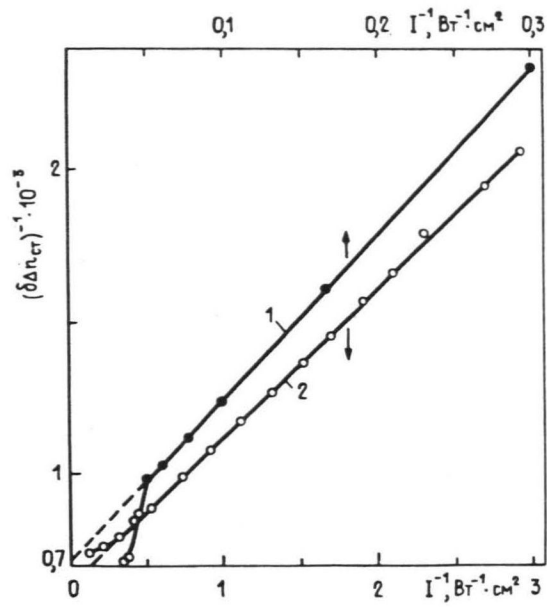


Рис. 5.5.. Зависимость $(\Delta n_{cr})^{-1} = f(I^{-1})$
 для кристалла $LiNbO_3 - Fe$
 (0,3 вес.%) при длине волны
 света 600 нм (1) и 496,5 нм (2).

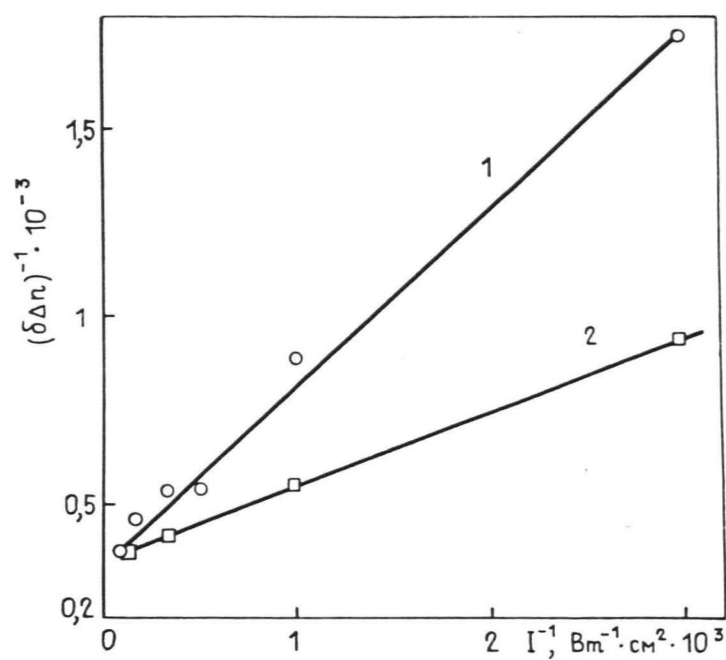


Рис. 5.6. Зависимость $(\delta\Delta n_{CT})^{-1} = f(I^{-1})$ для кристалла $LiNbO_3$ при длине волны света 600 нм (1) и 496,5 нм (2).

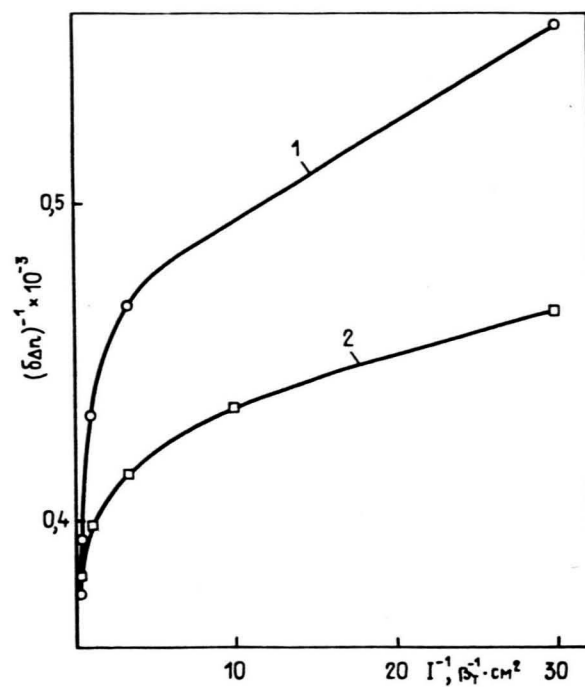


Рис. 5.7. Зависимость $(\delta\Delta n_{\text{ст}})^{-1} = f(I^{-1})$
 для кристалла $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$
 (0,1 вес.%) при длине волны
 света 600 нм (1) и 496,5 нм (2).

$LiNbO_3$ и $LiNbO_3-Fe$ (0,3 вес.%) описывает зависимость $\delta n_{ст} = f(I)$. В кристаллах $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес.%) экспериментальные точки явно не ложатся на прямую линию (рис. 5.7). Не исключено, что при более низких интенсивностях света в $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес.%), также как в $LiNbO_3$ и $LiNbO_3-Fe$ (0,3 вес.%), имеется линейная область в зависимости $(\delta n_{ст})^{-1} = f(I^{-1})$, однако измерения при $I < 0,03 \text{ Вт.см}^{-2}$ осложняются большими временами, необходимыми для достижения $\delta n_{ст}$.

Аналогичные результаты получены и на кристаллах $LiTaO_3$. На рис. 5.8 приведена экспериментальная зависимость $(\delta n_{ст})^{-1} = f(I^{-1})$, полученная на кристалле $LiTaO_3-Fe$ (0,3 вес.%). Максимальные интенсивности ($I_{макс}$), до которых $(\delta n_{ст})^{-1}$ линейно зависит от I^{-1} для различных образцов $LiTaO_3$ колеблются в пределах от 10 до 4000 Вт.см^{-2} (см.таблицу 5.1). В отличие от $LiNbO_3$ в кристаллах $LiTaO_3$ во всех образцах имеется область интенсивностей света с линейной зависимостью $(\delta n_{ст})^{-1} = f(I^{-1})$.

Анализ зависимостей $(\delta n_{ст})^{-1} = f(I^{-1})$ (см.табл. 5.2) показал, что K увеличивается с уменьшением длины волны света и это увеличение K более выражено в сильнолегированных кристаллах $LiNbO_3-Fe$. Эти результаты согласуются с результатами по зависимости $K(\lambda)$, найденной из спектральных измерений фотовольтаического тока в кристаллах $LiNbO_3$ с разной концентрацией примеси железа [94].

Большие расхождения получились между величинами β/ϵ_T определенными по зависимости $(\delta n_{ст})^{-1} = f(I^{-1})$ (см.табл. 5.2) и найденными при помощи величин β и ϵ_T , которые измерены

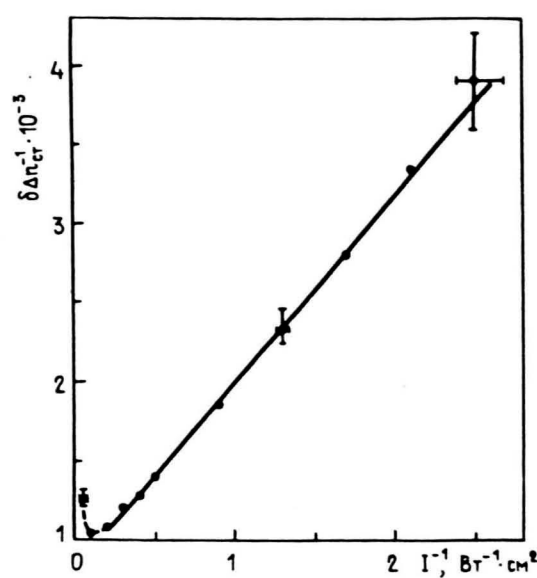


Рис. 5.8. Зависимость $(\Delta n_{ст})^{-1} = f(I^{-1})$
для кристалла $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$
(0,3 вес.%) при длине волны
света 514,5 нм.

прямым методом. Например, в работе [2] для $LiNbO_3-Fe$ (0,2 вес.%) получена величина $\beta/\sigma_T \approx 10^2 \text{ Вт}^{-1} \cdot \text{см}^2$, а по данным работы [24] находим величину $\beta/\sigma_T \approx 10^6$ для $LiNbO_3-Fe$ (0,01 моль %). Возникает вопрос, какая из величин, β или σ_T , определяет такое расхождение. Из зависимости, приведенной на рис. 5.5 можно найти численное значение величины $\beta/mK\alpha$ и так как величина K слабо зависит от концентрации железа в кристалле (если $\alpha > 0,2 \text{ см}^{-1}$) и примерно равно $1,3 \cdot 10^{-9} \text{ А} \cdot \text{см} \cdot \text{Вт}^{-1}$ [27], можно оценить величину β . Имея из рис. 5.5 ($\lambda = 600 \text{ нм}$) $\beta/mK\alpha = 0,71 \cdot 10^3$; $m = 1,1 \cdot 10^{-8} \text{ Вт}^{-1} \cdot \text{см}$ и $\alpha = 42 \text{ см}^{-1}$, находим величину $\beta = 4,3 \cdot 10^{-13} \text{ Вт}^{-1} \cdot \text{Ом}^{-1} \cdot \text{см}$. Полученное значение β согласуется с литературными данными (в работе [2] $\beta = 1,4 \cdot 10^{-12}$; [24] - $1,8 \cdot 10^{-13}$; [27] - $10^{-14} \text{ Вт}^{-1} \cdot \text{Ом}^{-1} \cdot \text{см}$) и можно сделать вывод, что величина σ_T , определенная при помощи экспериментальной зависимости $(\delta\eta_{CT})^{-1} = f(I^{-1})$, сильно отличается от величины темновой проводимости, измеренной при помощи электрометра или по времени релаксации ФР в темноте.

Ранее отмечалось (см. раздел 3.1), что характерное время возникновения ФР связано с проводимостью кристалла в освещенной области (3.1). Выражение (3.1) можно преобразовать

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\beta}{\varepsilon \varepsilon_0} I + \frac{\sigma_T}{\varepsilon \varepsilon_0} \quad (5.4)$$

Используя экспериментальную зависимость τ от I , графическим методом можно найти величины $\beta/\varepsilon \varepsilon_0$ и $\sigma_T/\varepsilon \varepsilon_0$, и, используя значение $\varepsilon = 45$ [42], определить величины β и σ_T . Такие исследования проводимостей при помощи зависимости $\tau^{-1} = f(I)$

на кристалле $LiTaO_3-Fe$ (0,3 вес.%) представлены на рис. 5.9 и табл. 5.3. Кроме того, в табл. 5.3 приведены значения темновой проводимости (σ_{TP}), найденные по времени релаксации $\delta \Delta n$ в темноте. Величины σ_T при всех температурах оказались больше, чем σ_{TP} , особенно это выражено при $T = 143$ K, когда σ_{TP} мало. Таким образом, величины σ_T , найденные при помощи зависимости $\tau^{-1} = f(I)$ оказываются больше темновой проводимости и согласуются с результатами, полученными по зависимости $(\delta \Delta n_{CT})^{-1} = f(I^{-1})$.

Для объяснения этих экспериментальных фактов можно предположить, что фотопроводимость в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ описывается следующим образом: $\sigma_\phi = \sigma_{\phi 0} + \beta' I$, где $\sigma_{\phi 0}$ - проводимость кристалла, созданная светом в начале освещения и не зависящая в некотором интервале от I , β' - коэффициент фотопроводимости, характеризующий изменение σ_ϕ от I . То, что выражение $\sigma_\phi = \beta I$ является неточным для описания фотопроводимости в $LiNbO_3-Fe$, отмечено и в других работах. Авторами работы [24] установлено, что величина фотопроводимости пропорциональна $I^{0,6}$. В работах [72, 73] экспериментально наблюдалась повышенная проводимость сегнетоэлектриков после их освещения лазерным светом, однако авторам [72] не удалось определить пороговую интенсивность, при которой возникает такая дополнительная проводимость кристалла $LiNbO_3-Fe$ (разные концентрации Fe , см. также раздел I.I.4).

Элементарный механизм такой фотопроводимости кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ пока не ясен, однако можно предположить, что кроме центров Fe^{2+} и Fe^{3+} в процессах фоторефракции важную роль играет и более мелкие центры захвата (природа не ус-

Таблица 5.3

Влияние температуры на темновую проводимость σ_T и фотопроводимость $\sigma_\phi = \beta I$, определенных при помощи (5.4) и темновую проводимость σ_{TP} , определенную по времени релаксации фоторефракции в темноте для $LiTaO_3-Fe$ (0,3 вес %)

T, K	$\sigma_T \cdot 10^{14}, \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$	$\sigma_\phi \cdot 10^{14}, \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$	$\sigma_{TP} \cdot 10^{14}, \text{ Вт}^{-1} \cdot \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{ см}$
293	20	6,3	5,6
250	12	1,2	3,8
143	4	0,02	1,5

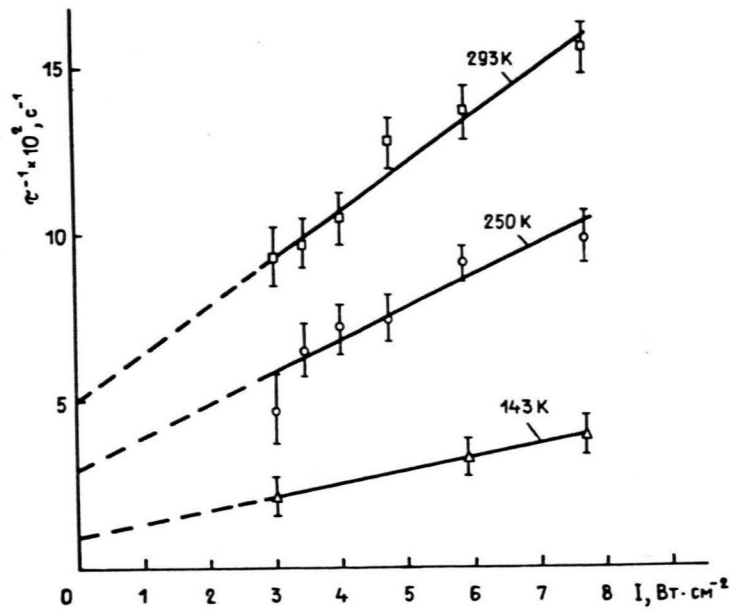


Рис. 5.9. Зависимость времени релаксации $\sigma_{\Delta n}$ от интенсивности света (514,5 нм) и температуры для $LiTaO_3\text{-Fe}$ (0,3 вес.%).

тановлена), которые и определяют величину $\sigma_{\phi 0}$.

В таком случае механизм возникновения дополнительной проводимости $\sigma_{\phi 0}$ можно представить по следующей схеме. Свет ионизирует Fe^{2+} центры, созданные свободные носители частично рекомбинируют на Fe^{3+} центрах и частично заполняют мелкие центры захвата. Термическая ионизация этих мелких центров захвата и их концентрация определяют величину $\sigma_{\phi 0}$. После выключения освещения при достаточно высоких температурах мелкие центры опустощаются, а освобожденные носители захватываются на Fe^{3+} центрах. На то, что в кристаллах $LiNbO_3$ присутствуют такие мелкие центры захвата свидетельствуют исследования ФР при азотных температурах (см. ниже раздел 5.3).

Учитывая отмеченные особенности фотопроводимости, выражение (5.1), описывающее зависимость $\delta \Delta n_{CT} = f(I)$, следует несколько изменить

$$\delta \Delta n_{CT} = \frac{m K \alpha I}{\sigma_T + \sigma_{\phi 0} + \beta' I} \quad (5.5)$$

Так как $\sigma_{T\phi} = \sigma_T + \sigma_{\phi 0}$ такого же порядка, как и βI при $I - 10 \text{ Вт.см}^{-2}$ или даже больше в номинально чистых кристаллах (см. таблицу 5.2), то выражение (5.5) объясняет зависимость $\delta \Delta n_{CT}$ от интенсивности света при довольно больших интенсивностях, что и наблюдается в эксперименте (рис. 5.4).

5.3. Зависимость фоторефракции в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ от температуры

Повышение температуры кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ уменьшает величину $\delta \Delta n_{CT}$ и время сохранения изменений двулучепре-

ломления в облученной области кристалла [24, 34, 75, 109, 110, 146]. Величина δn_{CT} определяется выражением (5.1) (см. также (5.5)), откуда следует, что основное влияние на температурную зависимость δn_{CT} должны оказывать, в основном, темновая и фотопроводимости, так как именно эти величины чувствительны к изменениям температуры в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ (см. разделы I.1.4 и I.2.4). Остальные коэффициенты в этих кристаллах слабо зависят от температуры, в том числе и K (константа Гласса) [24, 75].

Скорость рекомбинации разделенных светом электрических зарядов, которая определяет время сохранения величины δn в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$, зависит от темновой и фотопроводимости, если кристалл равномерно освещается.

Наши исследования (в диапазоне 100 - 500 К) зависимостей $\delta n_{CT} = f(I)$ и времени сохранения $\tau = f(I)$ наведенной светом величины δn в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ с разной концентрацией примеси железа дали основание предполагать наличие в этих кристаллах нескольких типов центров захвата, активных в процессах ФР [26, 160].

Исследования фоторефракции проводились поляризационно-оптическим методом (см. раздел 2). Температурная зависимость δn_{CT} исследовалась сфокусированным лазерным лучом (диаметр луча $D = 15$ мкм), а для исследования $\tau = f(T)$ применялся луч с $D = 0,26$ мм. Такой выбор диаметров воздействующего света связан с необходимостью снижения влияния поверхностных процессов на результаты измерений δn_{CT} , а при исследовании $\tau = f(T)$ с необходимостью определения распределения δn в освещенной области кристалла.

5.3.1. Релаксация фоторефракции в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$

Для предварительных исследований релаксации $\delta\Delta n$ применялся нагрев кристаллов с постоянной скоростью. До начала нагрева и далее во время нагрева периодически регистрировалось распределение $\delta\Delta n$ вдоль оптической оси кристалла. Величина $\delta\Delta n$ в центре распределения (см., например, рис. 3.10) уменьшалась с ростом температуры и в диапазоне 360 – 410 К обращалась в нуль (рис. 5.10). Следует отметить, что линейность возрастания температуры в термокамере была хорошей, но двулучепреломление (Δn) кристалла изменялось нелинейно и наблюдалось (по измерениям $\Delta n = f(T)$) отставание температуры кристалла от температуры в камере. Эти эффекты, по-видимому, связаны с конструкцией термокамеры (см. рис. 2.11); контролировалась термопарами температура воздуха в медной камере, а кристалл находился внутри этой камеры на керамическом держателе. Для исключения ошибки в определении температуры контролировалось изменение Δn в необлученной области кристалла, и по зависимости $\Delta n = f(T)$ определялась истинная температура кристалла. Такие исследования $T = f(T)$, хотя и весьма грубы, однако позволяют определить область температур, в которой $\delta\Delta n$ быстро релаксирует (рис. 5.10). Как видно из рис. 5.10, заметная релаксация $\delta\Delta n$ в $LiNbO_3$ -Fe начинается около 373 К, а около 400 К $\delta\Delta n$ исчезает. Эти результаты показывают, что температура стирания $\delta\Delta n$ в $LiNbO_3$ $T = 443$ К, рекомендованная в литературе [1, 6], имеет достаточный запас надежности. С другой стороны, исследования по фиксации записанных светом

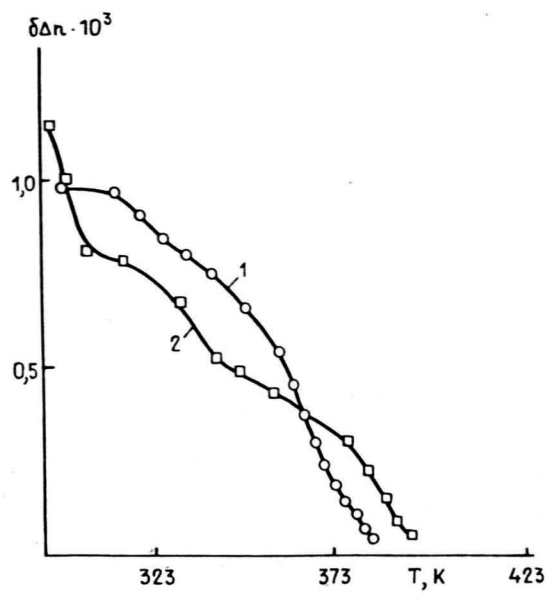


Рис. 5.10. Отжиг фоторефракции для $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ (0,1 вес.%) при нагреве кристаллов с постоянной скоростью $0,02 \text{ K}\cdot\text{s}^{-1}$ (1) и $0,04 \text{ K}\cdot\text{s}^{-1}$ (2).

голограмм в $LiNbO_3$ (см.раздел I.2.4) показывают, что для полного стирания результатов светового воздействия кристаллы необходимо нагревать до более высоких температур (573 К [68]).

Исследования скорости релаксации δn проводились по двум несколько отличающимся методикам. В одном случае δn индуцировалось при 293 К и кристалл быстро нагревался до необходимой температуры, при которой регистрировалось временная зависимость релаксации δn . В другом случае кристалл сразу нагревался до этой температуры, потом индуцировалось δn и регистрировалась кинетика релаксации. Результаты, полученные в обоих случаях, в пределах ошибки измерений не отличались, и в исследованиях применялся только второй метод, который является более простым. К недостаткам этого метода можно отнести необходимость использования более высоких интенсивностей света, так как с повышением температуры в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ величина $\delta n_{ст}$ быстро падает.

Как было отмечено ранее (см.раздел 3.I), рекомбинация электрических зарядов должна определяться максвелловским временем релаксации τ , которое зависит от проводимости кристалла (3.I) и, следовательно, можно ожидать экспоненциальный характер зависимости релаксации δn :

$$\delta n = \delta n_0 e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (5.6)$$

Исследования кинетики релаксации δn в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ дали линейную зависимость $\ln(\delta n)$ от времени (рис. 5.II и 5.I2). Это доказывает справедливость выражения (5.6) и дает возможность определить время релаксации τ_T .

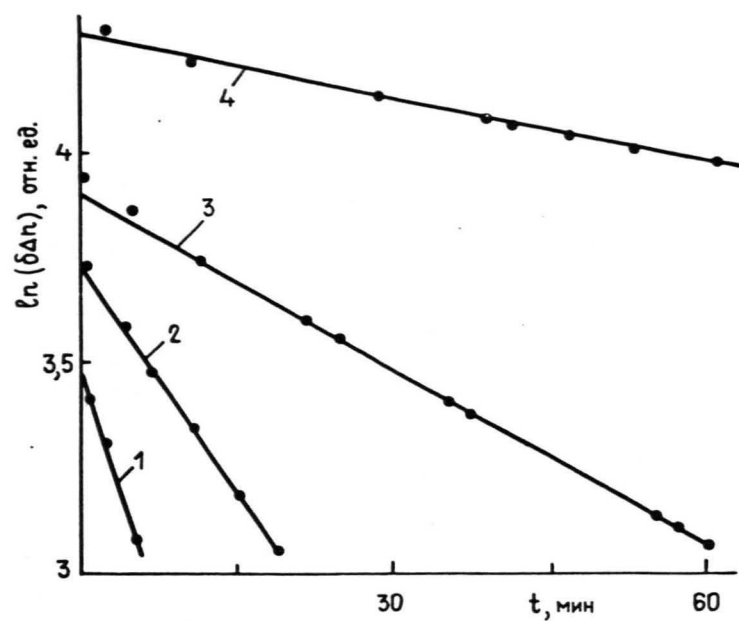


Рис. 5.II. Скорость отжига фоторефракции для LiNbO_3 при разных температурах:
1 - 373 К; 2 - 363 К; 3 - 353 К;
4 - 348 К.

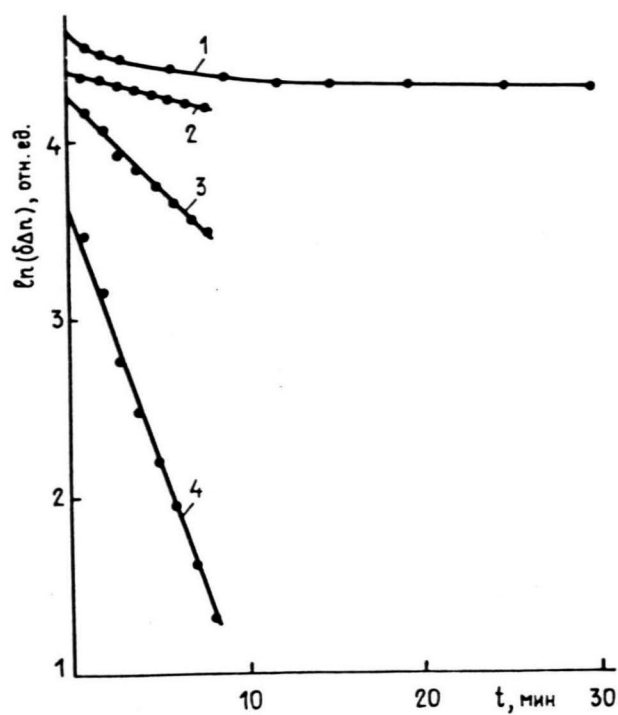


Рис. 5.12. Скорость отжига фоторефракции для $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$ (0,1 вес.%) при различных температурах: 1 - 333 К; 2 - 373 К; 3 - 393 К; 4 - 413 К.

Следует отметить, что в начальной стадии процесса релаксации и, особенно, при меньших температурах, наблюдался более быстрый спад $\delta\Delta n$, чем в конце измерений. Эта особенность была отнесена к поверхностным эффектам (см. раздел 4.2), так как при исследовании релаксации использовался лазерный луч со сравнительно большим диаметром ($D = 0,26$ мм). Авторы [72] при исследованиях релаксации $\delta\Delta n$ голографическим методом показали, что эффект повышенной скорости релаксации в начальной стадии после прекращения интенсивного освещения кристалла связан с созданной во время освещения дополнительной проводимостью (см. раздел I.I.4). Как известно, $\tau_T = \varepsilon\varepsilon_0/\sigma_T$, и можно предположить, что зависимость τ_T от температуры будет иметь вид

$$\tau_T = \tau_0 \exp\left(-\frac{W_T}{kT}\right), \quad (5.7)$$

а $\ln(\tau_T)$, следовательно, будет линейной функцией от обратной температуры с наклоном W_T/kT , где k - постоянная Больцмана. Измерения времени релаксации в кристаллах $LiTaO_3$ (рис. 5.13) показали справедливость выражения (5.7). Отклонения от прямой зависимости $\ln(\tau_T) = f(T^{-1})$ наблюдаются при исследовании образца $LiTaO_3-Fe(0,1 \text{ вес.}\%)$, а в образце с еще большей концентрацией Fe зависимость $\ln(\tau_T) = f(T^{-1})$ и энергия активации (табл. 5.4) существенно отличается. Аналогичные результаты получены и на кристаллах $LiNbO_3$ (рис. 5.14, табл. 5.4). Наши результаты хорошо согласуются с результатами по исследованию темновой проводимости в кристаллах $LiNbO_3$ с разной концентрацией железа [64, 65], которые показывают, что повышение концентрации железа свыше 0,2 вес.% резко увеличива-

Т а б л и ц а 5.4.

Энергия активации процесса фоторефракции в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3

Кристалл	Концентрация железа, вес. %	Энергия активации, эВ	Температурный диапазон, К	Условия определения
LiNbO_3	—	0,86	293–500	Термическая релаксация
$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$	0,1	0,83	293–500	
$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$	0,3	0,04; 0,16	115–170–275	
LiTaO_3	—	1,20	370–460	
$\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$	0,03	1,20	370–460	
$\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$	0,1	1,20	370–460	
$\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$	0,3	0,12; 0,27	160–250–420	
LiNbO_3	—	0,05; 0,33	170–275; 430–500	Во время воздействия света
$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$	0,1	0,03; 0,85	170–275; 430–500	
$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$	0,3	0,03; 0,40	170–275; 430–500	
$\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$	0,03	0,13	250–420	
$\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$	0,1	0,66	410–488	
$\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$	0,3	0,13	250–420	

Два значения энергии активации, приведенные для одного образца, получены в разных температурных областях, которые соответственно указаны для данного образца.

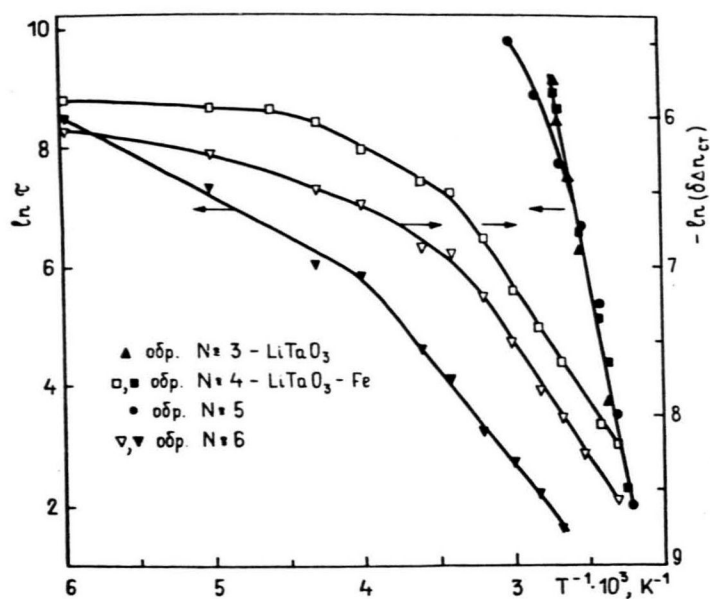


Рис. 5.13. Зависимости $\ln(\delta n_{cr})$ и $\ln \tau$ от обратной температуры для LiTaO_3 и $\text{LiTaO}_3 - \text{Fe}$ (характеристику образцов см. в табл. 5.1).

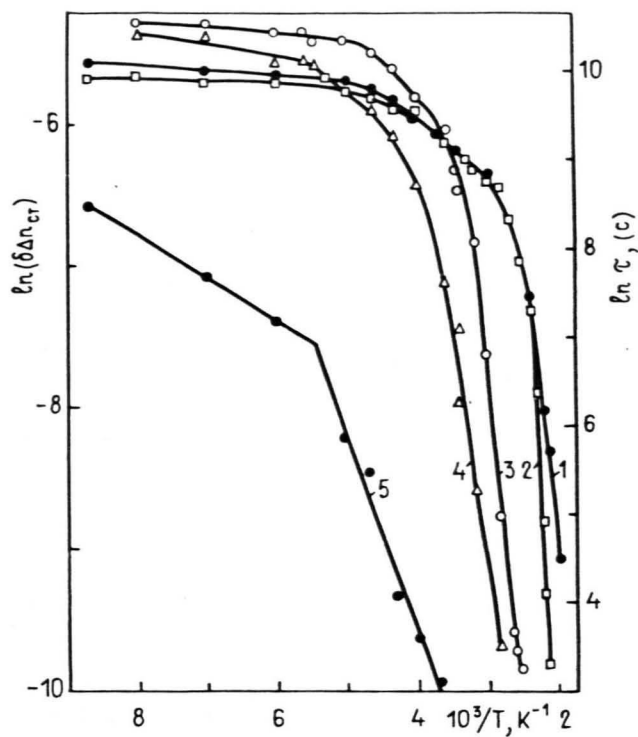


Рис. 5.14. Зависимость $\ln(\Delta n_{ст})$ и $\ln \tau$ от обратной температуры: 1, 5 - $LiNbO_3-Fe(0,3 \text{ вес.}\%)$; 2 - $LiNbO_3-Fe(0,1 \text{ вес.}\%)$; 3, 4 - $LiNbO_3$. Длина волны возбуждающего света 496,5 нм и интенсивность - 1 - 10 ; 2 - $0,1$; 3 - 10^4 ; 4 - 10^3 Вт.см^{-2} .

ет темновую проводимость.

С понижением температуры величина τ_T быстро возрастает; для ее оценки можно использовать полученные зависимости $\ln(\tau_T) = f(T^{-1})$. Такая экстраполяция дает при $T = 293$ К для $LiTaO_3$ $\tau_T = 4,5$ года, а для $LiNbO_3$ $\tau_T = 0,5$ года (концентрация $Fe < 0,1$ вес.%).

Исследования фоторефракции в $LiNbO_3$ при азотных температурах (до 100 К) показали, что $\delta\Delta n$, созданное ниже 200 К, частично релаксирует при нагреве кристалла до комнатной температуры. Кристаллы $LiNbO_3$ и $LiNbO_3-Fe$ (0,07 вес.%) облучались интенсивным светом при температуре T_0 , которая выбиралась в районе 100 – 300 К. Величина созданного $\delta\Delta n_0$ при T_0 (см.рис. 5.15) после нагрева кристалла до 293 К и повторного охлаждения до T_0 уменьшалась до $\delta\Delta n_T$. Это уменьшение наблюдалось как в номинально чистом кристалле $LiNbO_3$, так и в $LiNbO_3-Fe$, при этом понижение T_0 увеличивало степень низкотемпературной релаксации (величина $\delta\Delta n_T / \delta\Delta n_0$ падает) (табл. 5.5). При повышении T_0 выше 200 К, релаксация при нагреве кристаллов до $T \approx 293$ К исчезает, и для стирания такой записи необходимо нагревание кристалла до 400 К.

Результаты, полученные при исследовании релаксации $\delta\Delta n$ позволяют сделать вывод о том, что при различных температурах облучения индуцированные светом носители заряда в $LiNbO_3$ запасаются на различных по глубине центрах захвата. По-видимому, облучение светом кристаллов $LiNbO_3$ выше 200 К, в основном заполняет те центры захвата, которые начинают отжигаться при нагреве образцов до температуры 400 К. Предполагается, что этими центрами захвата являются примесные ионы трехвалент-

Таблица 5.5.

Изменение $\delta\Delta n$ в процессе отжига для кристаллов $LiNbO_3$ и $LiNbO_3-Fe$ (0,07 вес%)

Кристалл	T_0, K	$\delta\Delta n_0 \cdot 10^4$	$\delta\Delta n_T \cdot 10^4$	$\frac{\delta\Delta n_T}{\delta\Delta n_0}$
$LiNbO_3$	116	9,2	1,7	0,18
$LiNbO_3$	125	12,3	7,6	0,62
$LiNbO_3$	180	5,5	4,9	0,86
$LiNbO_3-Fe$	125	5,6	2,6	0,46

ного железа (см., например, [33, 37]). Роль центров захвата в $LiNbO_3$, отжиг которых наблюдается в районе 293 К, могут играть структурные дефекты, например, кислородные вакансии [12, 35, 58]. Отжиг фоторефракции ниже 200 К коррелирует с результатами работы [38], в которой наблюдался максимум термовысвечивания при 200 К для облученных гамма-излучением (температура облучения 77 К) кристаллов $LiNbO_3$.

5.3.2. Зависимость стационарных величин

фоторефракции от температуры

Зависимость $\delta n_{CT} = f(T)$ в $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ исследовались в диапазоне температуры 100 - 500 К. Как в кристаллах $LiNbO_3$, так и в $LiTaO_3$ величина δn_{CT} падает при повышении температуры (рис. 5.15 и 5.16).

В литературе известно несколько работ, посвященных исследованию температурной зависимости δn_{CT} , которые проведены только в диапазоне от 293 К до 500 К [34, 110]. В этих работах были формально определены энергии активации зависимости δn_{CT} от температуры. Для $LiNbO_3$ -Fe найдена величина энергии активации 0,85 эВ [110] (см. раздел 1.2.4), а для номинально чистого $LiNbO_3$ аналогичная величина оказалась равной $0,3 \pm 0,06$ эВ [34]. Наши результаты по исследованию $\delta n_{CT} = f(T)$ в $LiNbO_3$ хорошо согласуются с этими литературными данными (см. рис. 5.13, 5.14 и табл. 5.4). Следует отметить, что зависимости $\ln(\delta n_{CT}) = f(T^{-1})$ в полулогарифмических координатах не отображаются в виде прямых, а меняют наклон с ростом температуры. Особенно это заметно в области высоких температур. Определенные энергии активации в данном случае имеют условный

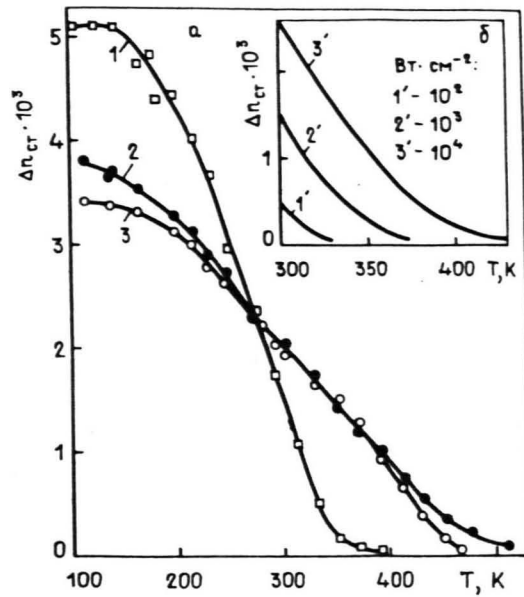


Рис. 5.15. Зависимость $\delta \Delta n_c$ от температуры и интенсивности света: (а) - 1 - $LiNbO_3$, 10^4 Вт.см $^{-2}$; 2 - $LiNbO_3$ -Fe (0,3 вес.%), 10 Вт.см $^{-2}$; 3 - $LiNbO_3$ -Fe (0,1 вес.%), $0,1$ Вт.см $^{-2}$; (δ) - $LiNbO_3$ при указанных интенсивностях света.

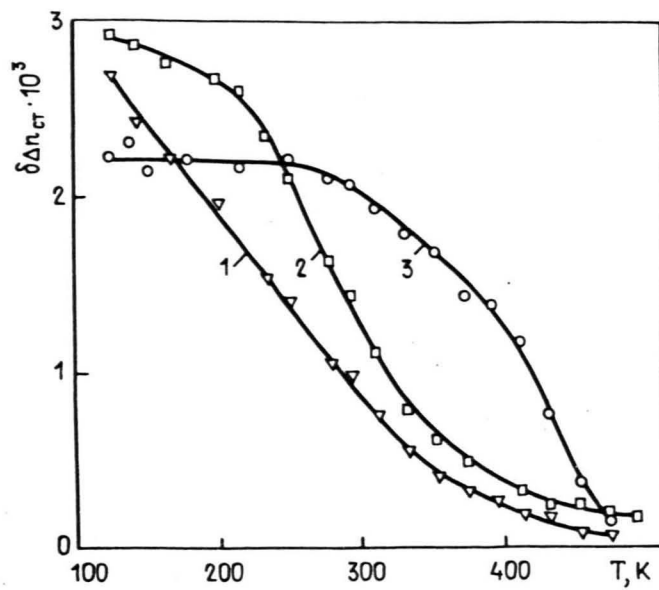


Рис. 5.16. Температурная зависимость Δn_{st} для $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$: 1 - 0,3; 2 - 0,03; 3 - 0,1 вес.% Fe . Интенсивность возбуждающего света выбрана с выполнением условий одинаковой поглощенной световой энергии и составляла: 1 - 4; 2 - 115; 3 - 7,5 Вт.см⁻².

характер и, естественно, могут сильно отличаться, если для определения их величины выбираются разные области температур.

Рассмотрим, как эмпирическое выражение (5.5) описывает зависимость $\delta\Delta\eta_{CT}$ от температуры. Подобный анализ зависимости $\delta\Delta\eta_{CT}=f(T)$ уже проводился в литературном обзоре на примере экспериментальных данных работы [24] (см. раздел I.2.4) и было показано, что температурную зависимость $\delta\Delta\eta_{CT}$ приближенно описывает выражение (I.9), полученное из (I.5) в предположении, что m и α не зависят от температуры, а K , σ_T и β зависят экспоненциально. Для применения (5.5) необходимо знать зависимость величины $\sigma_{\phi 0}$ от температуры. Исследования этой зависимости в $LiNbO_3-Fe$ (0,3 вес.%) (табл. 5.3) показывают, что $\sigma_{\phi 0}$ экспоненциально растет (медленнее, чем σ_T) с повышением температуры. В таком случае из (5.5) имеем

$$\delta\Delta\eta_{CT}=m\alpha K_0\left(\frac{\sigma_0}{I}e^{-\frac{W_T-W_j}{kT}}+\frac{\sigma_{\phi 0}}{I}e^{-\frac{W_{\phi 0}-W_j}{kT}}+\beta'e^{-\frac{W_{\phi}-W_j}{kT}}\right)^{-1} \quad (5.8)$$

где σ_0 , K_0 , $\sigma_{\phi 0}$ и β' - постоянные величины, а W_T , $W_{\phi 0}$, W_{ϕ} и W_j - энергии активации температурных зависимостей σ_T , $\sigma_{\phi 0}$, σ_{ϕ} и K соответственно. Как видно из (5.8), температурная зависимость $\delta\Delta\eta_{CT}$ определяется суммой трех экспонент, энергии активации которых W_T-W_j , $W_{\phi 0}-W_j$ и $W_{\phi}-W_j$ соответственно. Величина W_j в кристаллах $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ составляет 0,05 эВ [24, 75] и $\delta\Delta\eta_{CT}=f(T)$ практически определяется суммой проводимостей. При комнатных температурах величина σ_T низка и $\delta\Delta\eta_{CT}$, в основном, зависит от $\sigma_{\phi 0}$ и σ_{ϕ} . При высоких температурах, когда быстро возрастает σ_T , она и обуславливает быстрый спад $\delta\Delta\eta_{CT}$

(рис. 5.15 и 5.16).

Зависимость $\delta\eta_{CT} = f(T)$ в полулогарифмических координатах в виде $\ln(\delta\eta_{CT}) = f(T^{-1})$ при комнатных или более низких температурах дает прямую с небольшим наклоном. Энергия активации при этом близка к энергии активации фотопроводимости (в $LiNbO_3$ $W_\phi = 0,2$ эВ [24, 146]). Выше 400 К наклон увеличивается, и энергия активации, формально определенная, близка к энергии активации темновой проводимости (см. рис. 5.13, 5.14, табл. 5.4). В номинально чистых кристаллах $LiNbO_3$ на характер зависимости $\delta\eta_{CT} = f(T)$ существенно влияет интенсивность света. Зависимости $\delta\eta_{CT} = f(T)$, полученные при разных интенсивностях света (рис. 5.17) показывают, что только при интенсивностях света, превышающих 10^3 Вт.см⁻², наблюдается заметная величина

$\delta\eta_{CT}$ при температурах 370 К. Как известно (см. раздел 5.3.1), при этих температурах время стирания τ_T резко сокращается, т.е. величина β_T близка величине β_ϕ . Следовательно, только при этих температурах зависимость $\delta\eta_{CT} = f(T)$ будет, в основном, определяться зависимостью $\beta_T = f(T)$. Как видно из рис. 5.17, если $I > 10^3$ Вт.см⁻², величина $\delta\eta_{CT}$ быстро спадает с повышением температуры и практически не наблюдается около 360 К. Это приводит к тому, что определенные при низких интенсивностях света энергии активации зависимости $\delta\eta_{CT} = f(T)$ кристаллов $LiNbO_3$ (0,3 эВ) отражают, по видимому, зависимость $\beta_{\phi 0} = f(T)$. На это указывают низкая величина $\beta/\beta_{T\phi} = 1,7 \cdot 10^{-3}$ см².Вт⁻¹ ($\beta_{T\phi} = \beta_T + \beta_{\phi 0}$), полученная на $LiNbO_3$ из зависимостей $\delta\eta_{CT} = f(I)$ и величина энергии активации зависимости $\delta\eta_{CT} = f(T)$ (0,3 эВ), которая превышает по величине энергию активации фотопроводимости ($W_\phi = 0,2$ эВ). Если в этом интервале температур зависимость $\delta\eta_{CT}$

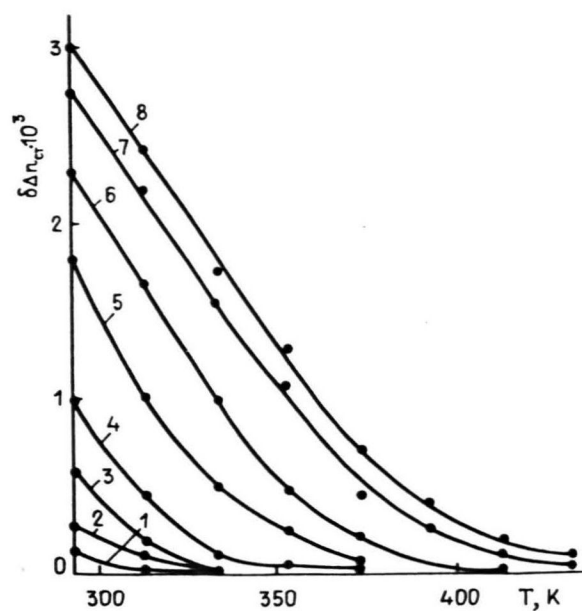


Рис. 5.17. Зависимость фоторефракции от температуры и интенсивности света для LiNbO_3 : 1 - 10; 2 - 30; 3 - 100; 4 - 300; 5 - 10^3 ; 6 - $3 \cdot 10^3$; 7 - 10^4 ; 8 - $2 \cdot 10^4$ Вт.см $^{-2}$.

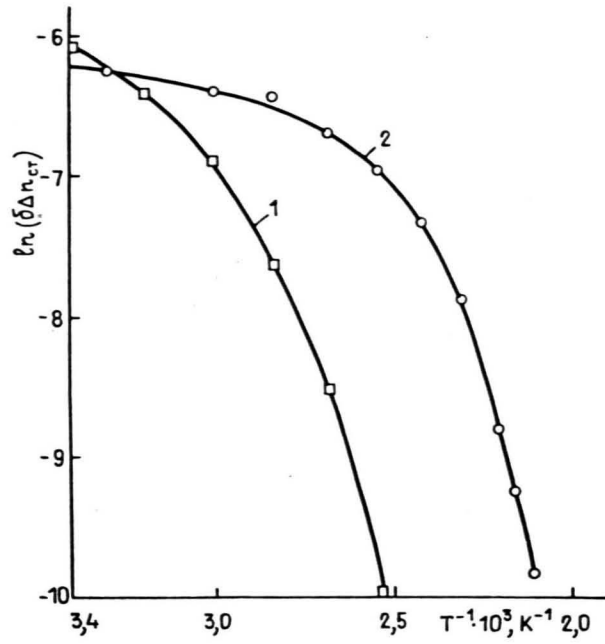


Рис. 5.18. Зависимость $\ln(\delta n_{cr})$ от обратной температуры при интенсивностях света: 1 - $LiNbO_3$, 10^4 Вт.см $^{-2}$; 2 - $LiNbO_3-Fe$ (0,1 вес.%), 0,1 Вт.см $^{-2}$.

от температуры определялась бы главным образом фотопроводимостью, тогда как это следует из (5.8), величина энергии активации зависимости $\delta\eta_{CT}=f(T)$ должна была бы быть ниже 0,2 эВ.

При интенсивностях света, превышающих 10^3 Вт.см⁻², в номинально чистых кристаллах $LiNbO_3$, также как и в $LiNbO_3-Fe$ при повышении температуры наблюдается увеличение наклона зависимости $\ln(\delta\eta_{CT})=f(T^{-1})$ в полулогарифмических координатах (рис. 5.18). Как уже отмечалось, эту особенность $\delta\eta_{CT}=f(T)$ хорошо объясняет выражение (5.8).

В ы в о д ы

Зависимость $\delta\eta_{CT}=f(I,T)$ можно объяснить, предполагая существование в кристаллах $LiNbO_3$, $LiTaO_3$ номинально чистых и с примесью железа аномального фотовольтаического эффекта и двух разных по глубине центров захвата, активных в процессах фоторефракции.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ И ВЫВОДЫ

Комплексные исследования фоторефракции в кристаллах $LiNbO_3$, $LiNbO_3-Fe$, $LiTaO_3$ и $LiTaO_3-Fe$ позволили выявить ряд новых закономерностей этого сложного фотоиндуцированного процесса в электрооптических кристаллах. Исследования зависимости фоторефракции от интенсивностей света (в диапазоне от 10^{-2} Вт см $^{-2}$ до 10^5 Вт см $^{-2}$) показали, что примеси существенно повышают стационарное значение $\delta\Delta n$ фоторефракции только в области интенсивностей меньше 10^2 Вт см $^{-2}$. В области больших интенсивностей возбуждающего света стационарное значение $\delta\Delta n_{ст}$ во всех исследованных кристаллах приблизительно равны. Это позволяет предполагать, что при различных интенсивностях возбуждающего света в процессах фоторефракции участвуют различные дефекты кристаллической решетки [14 - 16] .

Впервые исследована температурная зависимость фоторефракции в диапазоне от 100 до 500 К. Показано, что зависимость $\delta\Delta n_{ст} = f(T)$ объясняется, по крайней мере, двумя различными центрами захвата [12, 17] .

Детальное изучение процесса спонтанного уменьшения фоторефракции (т.н. "пробоя" кристалла) и влияния на этот процесс окружающей кристалл среды, позволили выяснить механизм этого процесса, который заключается в поверхностной рекомбинации индуцированных светом в объеме кристалла носителей заряда. Поверхностная рекомбинация осуществляется в виде электрического пробоя при поверхностного слоя окружающей атмосферы (воздух, аргон и др.) [3, 10] .

Исследования индуцированного светом оптического рассеяния выявили новые особенности этого явления в тонких кристаллах

(толщина меньше 0,4 мм) – резко анизотропную индикатриссу рассеяния, которая отражает анизотропию фоторефракции в кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$.

Основные выводы работы сводятся к следующему.

1. Зависимости фоторефракции от интенсивности света и температуры в LiNbO_3 и LiTaO_3 коррелируют с фотовольтаическим эффектом.
2. Температурные зависимости времени сохранения фоторефракции объясняются наличием двух различных центров захвата.
3. Явление спонтанного уменьшения $\delta\Delta n$ в кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$ обусловлено процессами поверхностной рекомбинации на границе кристалл-газ (электрический пробой газа вблизи поверхности).
4. Усиление анизотропного рассеяния когерентного света в кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$, возникает благодаря дифракционной решетке, созданной падающим светом (плоская волна) и рассеянным неоднородностями кристалла светом (сферическая волна).

В заключение автор выражает признательность своему научному руководителю, доктору физико-математических наук, члену-корреспонденту АН Латвийской ССР, профессору К.К.Шварцу за предложенную интересную тему.

Автор глубоко признателен сотрудникам лаборатории радиационной физики ионных кристаллов Института физики АН Латвийской ССР кандидату физико-математических наук А.О.Озолсу, кандидату физико-математических наук Ю.Х.Калниню, кандидату физико-математических наук Ю.А.Экманису, З.А.Гранту, А.В.Гулбису, кандидату химических наук Я.А.Тетерису, Г.Я. Скуинь и М.Я.Рейнфельде за постоянное внимание и помощь в выполнении работы.

Автор благодарит Н.Рубинину (МГУ), О.П.Бальву и М.Б.Космына (Харьковский НИИ Монокристаллов) за предоставление образцов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ для настоящей работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ashkin A., Boyd G.D., Dziedzic J.M., Smith R.G. Ballman A.A., Levinstein J.J., Nassau K. Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO_3 and LiTaO_3 . - Appl.Phys. Lett., 1966, vol.9, No.1, pp.72-74.
2. Glass A.M., Von der Linde D., Negran T.J. High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO_3 . - Appl.Phys.Lett., 1974, vol.25, No.4, pp.233-235.
3. Ohmori Y., Yasojima Y., Inuishi V. Control of optical damage in reduced LiNbO_3 by external applied field. - Appl.Phys. Lett., 1974, vol.26, No.12, pp.716-717.
4. Веневцев Ю.Н., Рез И.С., Стефанович С.Ю. Современное состояние и перспективы использования сегнетоэлектрических материалов. - В кн: Сегнето и пьезоматериалы и их применение. М., 1978, с.3-26.
5. Chen F.S., La Macchia Y.T., Fraser D.B. Holographic storage in lithium niobate. - Appl.Phys.Lett., 1968, vol.13, No.7, pp.223-225.
6. Шварц К.К., Готлиб В.И., Кристалсон Я.Ж. Оптические регистрирующие среды. - Рига, Зинатне, 1976, 184 с.
7. Воронов В.В., Кузьминов Ю.С., Осико В.В. Оптически индуцированное изменение показателя преломления в сегнетоэлектрических кристаллах и его использование для создания обратимой голографической памяти (обзор). - Квантовая электроника, 1976, т.3, №10, с.2101-2126.
8. Шварц К.К. Фотопреломление в кристаллах ниобата лития и поиск новых электрооптических материалов для записи оптической информации. - В кн.: Несеребрянные и необычные среды для голографии. Под ред. В.А.Барачевского, Л., Наука, 1978, 31-50.

9. Фридкин В.М. Фотосегнетоэлектрики. - Москва, Наука, 1979, 264 с.
10. Шувалов Л.А., Волк Т.Р. Эффект фоторефракции в сегнетоэлектрических кристаллах. - В кн.: Актуальные проблемы современной физики сегнетоэлектрических явлений. Калинин, 1978, с.31-70.
11. Шварц К.К. Фоторефракция и проблема создания управляемых пространственных модуляторов света. - В кн.: Применение методов оптической обработки информации и голографии. Л., 1980, с.265-274.
12. Chen F.S. Optically induced change of refractive indices in LiNbO_3 and LiTaO_3 . - J.Appl.Phys., 1969, vol.40, No.8, pp.3389-3396.
13. Johnston W.D.Jr. Optical index damage in LiNbO_3 and other pyroelectric insulators. - J.Appl.Phys., 1970, vol.41, No.8, pp.3278-3285.
14. Peterson G.E., Glass A.M., Negran T.J. Control of the susceptibility of lithium niobate to laser induced refractive index changes. - Appl.Phys.Lett., 1971, vol.19, No.5, pp.130-132.
15. Glass A.M., Von der Linde D., Auston D.H., Negran T.J. Excited state polarization bulk photovoltaic effect and the photorefractive effect in electrically polarized media. - J.Electr.Mater., 1975, vol.4, No.5, pp.915-943.
16. Леванюк А.П., Осипов В.В., К теории фотоиндуцированного изменения показателя преломления. - ФТТ., 1975, т.17, вып.12, с.3595-3602.
17. Леванюк А.П., Осипов В.В. Механизмы фоторефрактивного эффекта. - Изв.АН СССР сер. физ., 1977, т.41, с.752-770.
18. Amodi J.J. Analysis of transport processes during holographic recording in insulators. - RCA Rev., 1971, vol.32, No.2, p.p. 185-198.

19. Amodei J.J. - Appl.Phys.Lett., 1971, v.18, No.1, pp.22-24.
20. Марков В.Б., Одулов С.Г. и Соскин М.С. Исследование параметров объемных фазовых голограмм в активированных и восстановленных кристаллах $LiNbO_3$. - Изв. АН СССР сер. физ., 1977, т.41, №4, с.821-829.
21. Винецкий В.Л., Кухтарев Н.В., Марков В.Б., Одулов С.Г. и Соскин М.С. Усиление когерентных световых пучков динамическими голограммами в сегнетоэлектрических кристаллах. - Изв. АН СССР сер. физ., 1977, т.41, №4, с.811-820.
22. Young L., Wong W.K.Y., Thewalt M.L.W. and Cornish W.D. Theory of formation of phase holograms in lithium niobate. - Appl.Phys.Lett., 1974, vol.24, No.6, pp.264-265.
23. Гюнтер П., Круминь А.Э. Чувствительность записи и стирания фазовых голограмм в восстановленных кристаллах ниобата калия. - Автометрия, 1980, №1, с.55-65.
24. Jösch W., Munser R., Ruppel W. and Würfel P. The photovoltaic effect and the charge transport in $LiNbO_3$. - Ferroelectrics, 1978, vol.21, No.1-4, part 3, pp.623-625.
25. Young L., Moharam M.G., Guibaly F.El. and Lun E. Hologram writing in lithium niobate: Beam coupling and the transport length in the bulk photovoltaic effect. - J.Appl.Phys., 1979, vol.50, No.6, pp.4201-4207.
26. Augustov P.A., Shvarts K.K. The temperature and light intensity dependence of photorefraction in $LiNbO_3$. - Appl.Phys., 1980, vol.21, pp.191-194.
27. Канаев И.Ф., Малиновский В.К., Динамика оптического повреждения в кристаллах $LiNbO_3$. - Автометрия, 1980, № I, с.26-39.
28. Белиничер В.И., Канаев И.Ф., Малиновский В.К., Стурман Б.И. Фотоиндуцированные токи в сегнетоэлектриках. - Автометрия, 1976, №4, с.23-28.

29. Белиничер В.И., Малиновский В.К., Стурман Б.И. Фотогальванический эффект в кристаллах с полярной осью. - ЖЭТФ, 1977, Т.73, вып.2(8), с.692-699.
30. Belinicher V.I., Kanaev I.F., Malinovsky V.K., Sturman B.I. Theory of photogalvanic effect in ferroelectrics. - Ferroelectrics, 1978, vol.22, No.1-2, pp.647-648.
31. Von Baltz R., Kraut W. A model calculation to explain the existence of bulk photocurrents in ferroelectrics. - Solid State Commun., 1978, vol.26, No.12, pp.961-963.
32. Лайнс М., Гласс А. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. - М., Мир, 1981, 736 с.
33. Владимирцев Ю.В., Голинищев-Кутузов В.А., Мигачев С.А. Ша-муков Н.А. Особенности индуцированного изменения показателя преломления в LiNbO_3 . - ФТТ, 1978, т.20, вып.II, с.3453-3454.
34. Ангерт Н.Б., Пашков В.А., Соловьева Н.М. Оптически наведенная неоднородность показателя преломления в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3 . - ЖЭТФ, т.62, вып.5, 1972, с.1666-1672.
35. Зейналлы А.Х., Коган Л.С., Тимофеев А.Л. Влияние состава на голографическую запись в кристаллах ниобата лития. - ФТТ, 1976, т.21, вып.10, с.3139-3141.
36. Zylbersztejn A. Thermally activated trapping in Fe-doped LiNbO_3 . - Appl.Phys.Lett., 1976, vol.29, No.12, pp.778-780.
37. Kurz H., Krätzig E., Keune W., Engelmann H., Gonser H., Dischler B. and Räuber A. Photorefractive centers in LiNbO_3 studied by optical-, Mössbauer- and EPR-methods. - Appl. Phys., 1977, vol.12, pp.355-368.
38. Karaseva L.G., Bondarenko G.P., and Gromov V.V. Investigation of optical active centers of the irradiated lithium nio-

- bate. - Radiat.Phys.Chem., 1977, vol.10, pp.241-245.
39. Kovalevich V.I., Shuvalov L.A., Volk T.R. Spontaneous polarization reversal and photorefractive effect in single-domain iron-doped lithium niobate crystals. - phys.stat.sol.(a), 1978, vol.45, No.1, pp.249-252.
40. Азимзаде Р.Ю., Бездетный Н.М., Зейналлы А.Х., Тимофеев А.Л. - 4-я Азерб. респ. межвуз. конференция по физике 1978. Тез. докл. Баку, 1978, с.33.
41. Peterson G.E., Ballman A.A., Lenzo P.V., Bridenbaugh P.M. Electrooptic properties of LiNbO_3 . - Appl.Phys.Lett., 1964, vol.5, No.3, pp.62-64.
42. Кузьминов Ю.С. Ниобат и танталат лития. - М., Наука, 1975, 223 с.
43. Баласаян Р.Н., Вартанян Э.С., Габриелян В.Т. Влияние примеси Fe и Nd на генерацию второй гармоники в кристалле ниобата лития. - Квантовая электроника, 1979, т.6, №10, с.2256-2258.
44. Bollman W., Schothauer K., Zogal O.J. Bestimmung der OH-Konzentration in LiNbO_3 - Kristallen durch Protonenresonanz - Untersuchungen. - Kristall und Technik, 1976, vol.11, No.12, pp.1327-1332.
45. Weakliem H.A., Burke W.J., Redfield D. and Korsun V. Optical properties of SrTiO_3 and LiNbO_3 . - RCA Rev., 1975, vol.36, pp.149-156.
46. Kam-shing Kam, Henkel J.H., and Hsing-chow Hwang. Band structure and spontaneous polarization of ferroelectric LiNbO_3 . - J.Chem.Phys., 1978, vol.69, No.5, pp.1949-1951.
47. Bass M. Nd:YAG laser-irradiation-induced damage to LiNbO_3 and KDP. - IEEE J.Quant.Electron., 1971, vol.7, No.7, pp.350-359.

48. Зверев Г.М., Левчук Е.А., Пашков В.А., Порядин Ю.Д. Разрушение поверхности монокристаллов ниобата и танталата лития под действием лазерного излучения. - Квантовая электроника, 1972, №2, с.94-96.
49. Зверев Г.М., Колядин С.А., Левчук Е.А., Скворцов Л.А. Влияние поверхностного слоя на стойкость ниобата лития к действию лазерного излучения. - Квантовая электроника, 1977, т.4, №9, с.1882-1888.
50. Захаров С.И. О критерии пробоя диэлектриков мощным импульсом оптического излучения. - ЖЭТФ, 1976, т.71, вып.5(II), с.1863-1872.
51. Christmas T.M., Ley I.M. Laser induced damage in KDP materials. - Electron.Lett., 1971, vol.7, No. 18, pp.554-556.
52. Левин А.Б., Дубовик М.Ф., Разрушение кристаллов ниобата лития под действием интенсивного лазерного излучения. - Харьков, Сб. науч. тр. ВНИИ монокристаллов, сцинтилляцион. материалов и особо чист. хим. веществ. 1979, №3, с.75-78.
53. Сонин А.С., Василевская А.С. Электрические кристаллы. - М., Атомиздат, 1971, 328 с.
54. Озолиньш М.П. Временные зависимости поляризации и двулучепреломления в сегнетоэлектриках кислородно-октаэдрического типа. Дисс. канд. физ.-мат. наук. - Рига, 1979, 157 с.
55. Цернике Ф., Мидвинтер Дж. Прикладная нелинейная оптика. - М., Мир, 1976, 264 с.
56. Jorgensen P.J., Bartlett R.W. High temperature transport processes in lithium niobate. - J.Phys.Chem.Solids, 1969, vol.30, pp.2639-2648.
57. Bergman G. The electrical conductivity of LiNbO_3 . - Solid

- State Commun., 1968, vol.6, pp.77-79.
58. Bollmann W. and Gernand M. On the disorder of LiNbO_3 crystals. - phys.stat.sol. (a), 1972, vol.9, pp.301-308.
59. Ивчева Л.И., Кузьминов Ю.С., Осико В.В. Электропроводность монокристаллов LiNbO_3 . - Изв. АН СССР сер. неорган. мат., 1971, т.7, 1377-1382.
60. Пашков В.А., Соловьева Н.М., Уюкин Е.М. Фото- и темновая проводимость в кристаллах ниобата лития. - ФТТ, 1979, т.21, вып.6, с.1879-1882.
61. Блистанов А.А., Макаревская Е.В., Гераськин В.В., Камалов О., Коблова М.М. Влияние примесей на оптическое качество и электропроводность LiNbO_3 . - ФТТ, 1978, т.20, №9, с.2575-2580.
62. Канаев И.Ф., Малиновский В.К., Стурман Б.И. Экспериментальные исследования проводимости и фотоиндуцированного двулучепреломления в кристаллах LiNbO_3 . - Автометрия, 1978, №1, с.26-29.
63. Баркан И.Б., Маренников С.И., Пестряков Е.В. Запись динамических голограмм в кристалле ниобата лития с высоким содержанием примеси железа. - Квантовая электроника, 1977, т.4, №3, с.674-676.
64. Barkan I.B., Entin M.V., Marrennikov S.I. Conductivity of Fe-doped LiNbO_3 crystals. - phys.stat.sol. (a), 1977, vol.44, pp. K91-K94.
65. Barkan I.B., Baskin E.M., Entin M.V. Mechanism of conductivity of a Fe-doped LiNbO_3 crystal. - phys.stat.sol. (a), 1980, vol.59, pp. K97-K102.
66. Глушкова Т.М., Кисилев Д.Ф., Фирсова М.М. Температурная и частотная зависимости электрических свойств метаниобата

- лития. - ФТТ, 1971, т.13, №9, с.2753-2755.
67. Williams B.F., Burke W.I., Staebler D.L. Mobile Si ions in Fe-doped LiNbO_3 crystals. - Appl.Phys.Lett., 1976, vol.28, No.4, pp.224-226.
68. Meyer W., Würfel P., Munser R., Müller-Vogt G. Kinetics of fixation of phase holograms in LiNbO_3 . - phys.stat.sol. (a), 1979, vol.53, No.1, pp.171-180.
69. Куликов В.В., Петров М.П., Степанов С.И. Механизмы старения объемных голограмм в $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$. - Автометрия, 1980, №1, с.39-45.
70. Кудасова С.В., Блистанов А.А., Гераскин В.В. Влияние примеси на оптическую стабильность кристаллов LiNbO_3 в электрическом поле. - Электронная техника, 1979, сер.6 (материалы), вып.9(134).
71. Antonov V.A., Arsenev P.A., Baranov B.A., Mayer A.A., Farshtendiker V.L. Study of electrical conduction processes in lithium niobate single crystals. - phys.stat.sol. (a), 1973, vol.17, No.1, pp.K61-K64.
72. Bienvenu M.P., Woodbury D., and Rabson T.A. Hologram decay in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ with a time varying conductivity. - J.Appl. Phys.Lett., 1980, vol.51, No.8, pp.4245-4247.
73. Ковалевич В.И. Эффект фоторефракции в сегнетоэлектрических кристаллах семейства ниобатов. - автореф. Дис. канд. физ.-мат. наук, М., 1979, 177 с.
74. Tsuya H. and Fujino Y. Optical damage in LiTaO_3 . - Jap.J. Appl.Phys., 1973, vol.12, No.12, pp.1896-1903.
75. Krätzig E., Orlowski R., LiTaO_3 as holographic storage material.- Appl.Phys., 1978, vol.15, pp.133-139.
76. Krätzig E., Orlowski R. Reduction of optical damage effects

- in LiNbO_3 and LiTaO_3 . - Opt. and Quant.Electr., 1980, vol.12, pp.495-498.
77. Levinstein H.I., Ballmann A.A., Denton R.T., Ashkin A., Dziedzic I.M. Reduction of the susceptibility to optically induced index inhomogeneities in LiTaO_3 and LiNbO_3 . - J.Appl.Phys., 1967, vol.38, pp.3101-3102.
78. Smith R.G., Fraser D.B., Denton R.T., Rich T.C. Correlation of reduction in optically induced refractive-index inhomogeneity with OH content in LiTaO_3 and LiNbO_3 . - J.Appl.Phys., 1968, vol.39, No.10, pp.4600-4602.
79. Serreze H.B., Goldner R.B. Study of the wavelength dependence of optically induced birefringence change in undoped LiNbO_3 . - Appl.Phys.Lett., 1973, vol.22, No.12, pp.626-627.
80. Krätzig E., Kurz H. Spectral dependence of the photorefractive recording and erasure process in doped LiNbO_3 . - Ferroelectrics, 1976, vol.10, pp.159-162.
81. Krätzig E., Kurz H. Photorefractive and photovoltaic effects in doped LiNbO_3 . - Optica Acta, 1977, vol.24, No.4, pp.475-482.
82. Peterson G.E., Glass A.M., Cornevalle A., Bridenbaugh P.M. Control of laser damage in LiNbO_3 . - J.Amer.Ceram.Soc., 1973, vol.56, No.5, pp.278-282.
83. Tsua H. Optical damage in transition-metal-doped LiTaO_3 . - J.Appl.Phys., 1975, vol.46, No.10, pp.4323-4333.
84. Тсуя Х. Эффект оптического искажения в кристаллах LiTaO_3 легированных ионами переходных металлов. - Изв. АН СССР сер.физ., 1977, т.41, №4, с.740-747.
85. Ishida A., Mikami O., Miyazawa S., Sumi M. Rh-doped LiNbO_3 as an improved new material for reversible holographic

- storage. - Appl.Phys.Lett., 1972, vol.21, No.5, pp.192-193.
86. Mikami O., Ishida A. Effects of oxygen-deficiencies on the recording sensitivity of holograms in Rh-doped LiNbO_3 . - 1973, vol.9, No.4, pp.354-356.
87. Okamoto E., Ikeo H., Muto K. Holographic storage in U-doped LiNbO_3 . - Appl.Opt., 1975, vol.14, No.10, pp.2453-2455.
88. Zhong Gi-Guo, Jin Jian, and Wu Zhong-Kang. Measurements of optically induced refractive-index damage of lithium niobate doped with different concentrations of MgO . - JOSA, 1980, vol.70, No.6, p.631.
89. Бухараев А.А., Мигачев С.А., Монахов А.А., Голенищев-Кутузов В.А., Щамуков Н.А., Яфаев Н.Р. Ангерт Н.Б. Исследование примесных центров железа в ниобате лития. - ФТТ, 1976, т.18, с.602-605.
90. Vladimirtsev Y.V., Golenishchev-Kutuzov V.A., Migachev S.A., and Shamukov N.A. Optical damage in transition metal doped ferroelectrics. - Ferroelectrics, 1978, vol.22, pp.653-654.
91. Phillips W. and Staebler D.L. Control of the Fe^{2+} concentration in iron-doped lithium niobate. - J.Electr.Mater., 1974, vol.3, No.2, pp.601-617.
92. Dischler B., Rauber A. Oxygen vacancy model for chemochromic effects in LiNbO_3 doped with Mn, Fe or Cu. - Sol.St. Commun., 1975, vol.17, No.8, pp.953-956.
93. Staebler D.L., Phillips W. Hologram storage in photochromic LiNbO_3 . - Appl.Phys.Lett., 1974, vol.24, No.6, pp.268-270.
94. Krätzig E., Kurz H. Investigation of photovoltaic effects in doped LiNbO_3 . - J.Electrochem.Soc., 1977, vol.124, No.1, pp.131-134.
95. Von der Linde D., Glass A.M. Multiphonon processes for

- optical storage in pyroelectrics. - Ferroelectrics, 1976, vol.10, pp.5-8.
96. Von der Linde D., Glass A.M., Rodgers K.F. Optical storage using refractive index changes induced by two-step excitation. - J. Appl. Phys., 1976, vol.47, No.1, pp.217-220.
97. Kurz H., Von der Linde D. Nonlinear optical excitation of photovoltaic LiNbO_3 . - Ferroelectrics, 1978, vol.21, No.1-4, part 3, pp.621-622.
98. Schirmer O.F., Von der Linde D. Two-phonon- and X-ray-induced Nb^{4+} and O^- small polarons in LiNbO_3 . - Appl. Phys. Lett., 1978, vol.33, No.1, pp.35-38.
99. Chen F.S. A laser-induced inhomogeneity of refractive indices in KTN. - J. Appl. Phys., 1967, vol.38, pp.3418-3420.
100. Thater J.B. Electrical control of holographic storage in strontium-barium niobate. - Appl. Phys. Lett., 1969, vol.15, No.7, pp.210-212.
101. Аугустов П.А., Готлиб В.И. Влияние электрического поля на фотопреломление в ниобате лития. - Изв. АН Латв.ССР, сер. физ. и мат. наук, 1976, №3, с.114-117.
102. Аугустов П.А., Шварц К.К. Влияние внешнего электрического поля и интенсивности света на фотопреломление в LiNbO_3 . - Изв. АН Латв.ССР, сер. физ. и техн. наук, 1978, №5, с.10-12.
103. Ohmori Y., Yasojima Y., Inuishi Y. Control of optical damage in reduced LiNbO_3 by external applied field. - Appl. Phys. Lett., 1974, vol.25, No.12, pp.716-717.
104. Белабаев К.Г., Марков В.Б., Одулов С.Г. Управляемая электрическим полем запись информации в кристаллах LiNbO_3 . - Укр. физ. журнал, 1976, т.21, №11, с.1820-1822.
105. Cornish W.D., Moharam M.G., Young L. Effects of applied

- voltage on hologram writing in lithium niobate. - J. Appl. Phys., 1976, vol.47, No.4, pp.1479-1484.
106. Spinhirne J.M., Ang D., Joiner C.S., Estle T.L. Simultaneous holographic and photocurrent studies of the photo-refractive effect in LiTaO_3 and LiNbO_3 . - Appl. Phys. Lett., 1977, vol.30, No.2, pp.89-91.
107. Пашков В.А., Соловьева Н.М., Ангерт Н.Б. Наведенная оптическая неоднородность в ниобате лития во внешнем электрическом поле. - ФТТ, 1979, т.21, вып.1, с.92-99.
108. П.Гюнтер, Мишерон Ф. Эффекты фотопреломления и фототоки в $\text{KNbO}_3:\text{Fe}$. - Автометрия, 1978, №2, с.3-17.
109. Баркан Н.Б., Воробьев А.В., Маренников С.И. Нестационарная оптическая память в кристалле ниобата лития. - Квантовая электроника, 1979, №4, с.833-835.
110. Ohmori Y., Yamaguchi M., Yoshino K., Inuishi Y. Optical damage in Fe-doped LiNbO_3 . - Jap. J. Appl. Phys., 1979, vol.18, No.1, pp.79-84.
- III. Аугустов П.А., Фотофизические процессы оптической записи в ниобате и танталате лития. - В кн.: Применение методов оптической обработки информации и голографии. Л., 1980, 442 с.
112. Amodei J.J., Staebler D.L. Holographic pattern fixing in electro-optic crystals. - Appl. Phys. Lett., 1971, vol.18, No.12, pp.540-542.
113. Staebler D.L., Amodei J.J. Thermally fixed holograms in LiNbO_3 . - Ferroelectrics, 1972, vol.3, No. 2-4, pp. 107-113.
- II4. Куликов В.В., Степанов С.И. Механизмы голографической записи и термического фиксирования в фоторефрактивном

$\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$. - ФТТ, 1979, т.21, вып.11, с.3204-3208.

- II5. Бобринев В.И., Васильева З.Г., Гуланиян Э.Х., Микаэлян А.Л. Многократная перезарядка и фиксирование голограмм в кристаллах ниобата лития, легированных железом. - Письма в ЖЭТФ, 1973, т.18, вып.4, с.267-269.
- II6. Гуланиян Э.Х., Дорош И.Р., Искин Д.Д., Микаэлян А.Л., Майорчук М.А. Неразрушающее считывание голограмм в кристаллах ниобата лития, легированных железом. - Квантовая электроника, 1979, т.6, №5, с.1097-1100.
- II7. Дорош И.Р. Исследование свойств фоторефрактивных сегнетоэлектриков $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ и НБС для голографической регистрации информации. - Дисс. канд. физ.-мат. наук, Москва, 1980, 161 с.
- II8. Волк Т.Р., Гинзберг А.В., Ковалевич В.И., Шувалов П.А. Электрические поля при фоторефракции в кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$. - Изв. АН СССР ср. физ. 1977, т.41, №4, с.783-787.
- II9. Абрамов Н.А., Воронов В.В., Локальная фотодеформация и фоторефракция в кристаллах ниобата лития. - ФТТ, 1979, Т.21, вып.4, с.1234-1236.
120. Augustov P.A., Shvarts K.K. Surface recombination and photo-refraction in $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$ crystals. - Appl.Phys., 1979, vol.18, pp.399-401.
121. Гулбис А.В. Расчет фотопреломления в $\text{LiNbO}_3\text{-Fe}$. - Изв. АН Латв.ССР, сер. физ. и техн. наук, 1978, №3, с.38-43.
122. Бьюб Р. Фотопроводимость твердых тел, М., Мир, 1962, 559с.
123. Glass A.M., Auston D.H. Excited state dipole moments of impurities in polar crystals. - Opt.Communs., 1972, vol.5, No.1, pp.45-49.
124. Фридкин В.М., Попов Б.Н. Аномальный фотовольтаический

- эффект в сегнетоэлектриках. - УФН, 19786 т.126, вып.4, с.657-671.
125. Белабаев К.Г., Марков В.Б., Одулов С.Г. Фотовольтаический эффект в восстановленных кристаллах ниобата лития. - ФТТ, 1978, т.20, вып.8, с.3520-3522.
126. Fridkin V.M., Popov B.N., Verkhovskaya K.A. The photo-voltaic and photorefractive effects in KDP-type ferro-electrics. - Appl.Phys., 1978, vol.16, No.3, pp.313-315.
127. Воронов В.В., Кузьминов Ю.С., Осико В.В. Механизм фоторефракции в кристалле ниобата бария-натрия, легированного ионами *Fe* и *Mo*. - ФТТ, 1979, т.21, вып.10, с.3061-3065.
128. Иванов Б.П., Ширатов Э.Т. Аномальный вольтатический эффект в полупроводниках-сегнетоэлектриках при облучении кристаллов ионизирующим излучением. - ФТТ, 1979, т.21, вып.5, с.1565-1567.
129. Chanussot G., Fridkin V.M., Gode froy G., Jannot B. Photo-induced raylight scattering in crystals showing a bulk photovoltaic effect. - Ferroelectrics, 1978, v.21, N1-4, p.3, p.615-620.
130. Белиничер В.И., Стурман Б.И. Фононный механизм фотогоальванического эффекта в пьезоэлектриках. - ФТТ, 1978, т.20, вып.3, с.821-829.
131. Баскин Э.М., Магарилл Л.И., Энтин М.В. Фотогалванический эффект в кристаллах без центра инверсии. - ФТТ, 1978, т.20, вып.8, с.2432-2436.
132. Бурсиан Э.В., Гиршберг Я.Г., Трунов Н.Н. Локализация носителей и фотовольтаический эффект в сегнетоэлектриках. - В кн.: Электроны и фононы в сегнетоэлектриках. Л., 1979, с.43-46.

133. Белиничер В.Н., Малиновский В.К., Стурман Б.И. Фотогальванический эффект в поляронных кристаллах. - Новосибирск, Инст. автоматики и электрометрии СО АН СССР, препринт №78, 1978, 5 с.
134. Белиничер В.И., Канаев И.Ф. Малиновский В.К., Стурман Б.И. Исследование механизмов оптического повреждения кристаллов ниобата лития. Изв. АН СССР сер. физ., 1977, т.4, №4, с.733-739.
135. Shein L.B., Cressman P.J., Cross L.E. Pyroelectric induced optical damage in LiNbO_3 . - J.Appl.Phys., 1978, vol.49, No.2, pp.798-800.
136. Баркан И.Б., Пестряков Е.В., Энтин М.В. Исследование импульсной голографической записи в монокристалле LiNbO_3 с примесью Fe. - Автометрия, 1976, №4, с.18-22.
137. Гулбис А.В., Кристофель Н.Н. Оценка величины индуцированного светом изменения показателя преломления вибронного сегнетоэлектрика. - Изв. АН Латв.ССР, сер. физ. и техн. наук, 1979, №2, с.191-121.
138. Кристофель Н.Н., Гулбис А.В. Возможность собственного аномального фотовольтаического эффекта в вибронном сегнетоэлектрике. - Изв. АН Эст.ССР. Физ. Матем., 1979, т.28, №3, с. 268-271.
139. Amodei J.J., Staebler D.L. Holographic recording in lithium niobate. - RCA Review, 1972, vol.33, No. 1, pp.71-93.
140. Дейген И.Ф., Одулов С.Г., Соскин М.С., Шанина Б.Д. Фазовые голографические решетки в неметаллических кристаллах. - ФТТ, 1974, т.16, вып.7, с.1895-1902.
141. Марков В.Б., Одулов С.Г., Соскин М.С. Исследование пара-

метров объемных фазовых голограмм в активированных и восстановленных кристаллах LiNbO_3 . - Изв. АН СССР, сер. Физ., 1977, т.41, №4, с.821-829.

142. Moharam M.G., Young L. Reading and optical erasure of holograms stored by photorefractive effect in lithium niobate. - Appl.Opt., 1978, vol.17, No.17, pp.2773-2778.
143. Orlowsky R., Krätzig E. Holographic method for the determination of photo-induced electron and hole transport in electro-optic crystals. - Sol.St.Comm., 1978, vol.27, pp.1351-1354.
144. Orlowsky R., Krätzig E. Holographic investigation of charge transport in electrooptic crystals. - Ferroelectrics, 1980, vol.26, No.1-4, pp.831-834.
145. Леванюк А.П., Уюкин Е.М., Пашков В.А., Соловьева Н.М. Механизм фоторефрактивного эффекта в ниобате лития с железом. - ФТТ, 1980, т.22, вып.4, с.1161-1169.
146. Пашков В.А., Соловьева Н.М., Уюкин Е.М. Фото- и темновая проводимости в кристаллах ниобата лития. - ФТТ, 1979, т.21, вып.6, с.1879-1882.
147. Меланхолин Н.М. Методы исследования оптических свойств кристаллов. - М., Наука, 1970, 156 с.
148. Климков Ю.М. Основы расчета оптико-электронных приборов с лазерами. - М., Советское радио, 1978, 264 с.
149. Huignard J.P., Micheron F. and Spitz E. Optical systems and photosensitive materials for information storage. - In: Optical properties of solids, new developments. Edited by Seraphin B.O., North-Holland publishing company-Amsterdam,

Oxford, American Elsevier publ.comp.- New-York, 1976, pp.847-925.

- I50. Клотиньш Э.Э., Круминь А.Э., Ауза В.Я., Ильин У.Ю., Димза В.И. Распределение электрического поля в электрооптическом модуляторе с планарными электродами. В кн.: Ученые записки Латвийского государственного университета им.П.Стучки. Электрооптическая сегнетокерамика, Рига, 1975, с.247-277.
- I51. Камке Д., Кремер К. Физические основы единиц измерения. - М., Мир, 1980, 208 с.
- I52. Венкин Т.В., Кулюк Л.Л., Малеев Д.И. Схема прецизионного термостатирования на интегральной микросхеме. - Приборы и техника эксперимента, 1975, №4, с.222-223.
- I53. Kim D.M., Gallagher J.G., Jr., Rabson T.A., and Tittel F.K. Intensity enhanced bulk photovoltaic effects in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$. - Appl.Phys., 1978, vol.17, pp.413-416.
- I54. Озолс А.О. Фотофизические процессы в неорганических материалах при записи голограмм. - Дис. ... канд. физ.-мат. наук., Рига-Саласпилс, 1979, 269 с.
- I55. Fridkin V.M., Boikova E.I., Popov B.N., Rosenman G.I. The influence of the anomalous photovoltaic effect on the exoelectron emission in LiNbO_3 . - Phys. Stat,Sol, 1978, vol.50, №.2, pp.K255-K259.
- I56. Розенман Г.И., Рез И.С., Чепелев Ю.Л., Ангерт Н.Б., Жашков А.А. Экзоэмиссия пирозелектрика LiTaO_3 . - ФТТ, 1980, т.22, №II, с.3466-3469.
- I57. Кортон В.С., Зацепин А.Ф. и др. Спонтанная электронная эмиссия монокристаллов LiNbO_3 с различной доменной структурой. - Журн.техн.физ., 1980, т.50, №9, с.1934-1938.

158. Bergman I., Ashkin A., Ballman A. et.al. Curie-temperature birefringence and phasematching temperature variations in LiNbO_3 as a function of melt stoichiometry. - Appl.Phys. Lett., 1968, vol.12, No.3, pp.92-94.
159. Георгиев Г.М., Китаева Г.Х., Михайловский А.Г. и др. Стехиометрия метаниобата лития и спонтанное параметрическое рассеяние света в нем. - ФТТ, 1974, т.16, №11, с.3524-3526.
160. Шварц К.К., Аугустов П.А., Бальва О.П., Космына М.Б. Зависимость фоторефракции от температуры и интенсивности света в LiTaO_3 . - Автометрия, 1981, №5, с.33-38.
161. Авакян Э.М., Алавердян С.А., Белабаев К.Г. и др. Особенности наведенной оптической неоднородности в кристаллах LiNbO_3 с примесью железа. - ФТТ, 1978, т.20, вып.8, с.2428-2431.
162. Яворский В.М., Детлаф А.А. Справочник по физике. М., Наука, 1965, 848 с.
163. Озолс А.О., Аугустов П.А., Шварц К.К. Дифракционная эффективность тонких голограмм при наличии многократных внутренних отражений. - Опт. и спектроск., 1978, т.44, вып.6, с.1171-1179.
164. Wemple S.H., Di Domenico M.Jr., and Camlitel I. Relationship between linear and quadratic electro-optic coefficients in LiNbO_3 , LiTaO_3 and other oxygen-octahedra ferroelectrics based on direct measurement of spontaneous polarization. - Appl.phys.lett., 1968, vol.12, No.6, pp.209-211.
165. Philips W., Amodei J.J., and Staebler D.L. Optical and holographic storage properties of transition metal doped lithium niobate. - RCA Review, 1972, vol.33, pp. 94-109.

166. Magnusson R., and Gaylord T.K. Laser scattering induced holograms in lithium niobate. - Appl.Phys., 1974, vol.13, No.7, pp.1545-1548.
167. Alphonse G.A. and Phillips W. Iron-doped lithium niobate as a read-write holographic storage medium. - RCA Review, 1976, vol.37, 184-205.
168. Шварц К.К. Фотостимулированные процессы в неорганических материалах и их применение для записи информации. - Успехи науч. фотогр., 1980, т.20, с.29-44.
169. Озолс А.О. Анизотропия фотопреломления в кристаллах LiNbO_3 -Fe . - Изв.АН Латв.ССР. Сер.физ. и техн. наук, 1977, №4, с.46-51.
170. Ragnarson S.I. Scattering phenomena in volume holograms with strong coupling. - Appl.Opt., 1978, vol.17, No.1, pp.116-127.