

- len.— Acta Phys. Austr., 1979, № 20, p. 241—255.
4. Суханов В. И. и др. Запись фазовых голограмм на органическом полимерном материале с дисперсией, изменяющейся вследствие триплет сенсibilизированных процессов.— В кн.: Оптическая голография. Л.: Наука, 1979, с. 24—42.
 5. Фурухата И. Оценка и контроль оптических дефектов в НБС.— Изв. АН СССР. Сер. физ., 1977, т. 41, № 3.
 6. Дорош И. Р. Увеличение чувствительности и дифракционной эффективности голограмм в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ при использовании для записи и считывания различной поляризации света.— Вопросы радиоэлектроники. Сер. общетехн., 1979, вып. 3, с. 119—125.
 7. Kogelnik H. Coupled Wave Theory for Thick Hologram Gratings.— Bell Syst. Techn. J., 1969, vol. 48, N 9.
 8. Amodei J. J. Analysis of Holographic Recording in Insulators.— RCA Review, 1971, vol. 32, N 2, p. 185—198.
 9. Young L. et al. Theory of Formation of Phase Holograms in Lithium Niobate.— Appl. Phys. Lett., 1974, vol. 24, N 6.
 10. Гюнтер П., Мишерон Ф. Эффекты фотопреломления и фототоки в $\text{KNbO}_3:\text{Fe}$.— Автometрия, 1978, № 2.
 11. Воронов В. В. и др. Фотоэлектрические и фоторефрактивные свойства кристаллов ниобата бария—стронция, легированных церием.— Квант. электроника, 1979, т. 6, № 9.
 12. Staebler D. L., Amodei J. J. Coupled-Wave Analysis of Holographic Storage in LiNbO_3 .— J. Appl. Phys., 1972, vol. 43, N 3.
 13. Krätzig E., Orłowski R. LiTaO_3 as Holographic Storage Material.— Appl. Phys., 1978, vol. 15, N 1.
 14. Moharam M. G., Young L. Reading and Optical Erasure of Holograms Stored by the Photorefractive Effect in Lithium Niobate.— Appl. Opt., 1978, vol. 17, N 9.
 15. Воронов В. В. и др. Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах НБС: Се.— Квант. электроника, 1980, т. 7, № 11.

Получила в редакцию 5 марта 1981 г.

УДК 621.375.826 : 537.226.4

П. А. АУГУСТОВ, О. П. БАЛЬВА, М. Б. КОСМИНА,
К. К. ШВАРЦ

(Рига)

ЗАВИСИМОСТЬ ФОТОРЕФРАКЦИИ ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ И ИНТЕНСИВНОСТИ СВЕТА В LiTaO_3

Фоторефракция (ФР) в сегнетоэлектриках является предметом многочисленных экспериментальных и теоретических исследований (см., например, [1—3]). ФР ухудшает параметры электрооптических модуляторов света, однако может быть эффективно использована для записи информации.

В настоящее время существует несколько механизмов возникновения ФР в сегнетоэлектриках. Ф. С. Чен [4] впервые на основе исследований распределения двулучепреломления в освещенной области кристаллов LiNbO_3 и LiTaO_3 , предложил механизм ФР, основанный на фотопереносе заряда вдоль полярной оси кристалла что приводит к локальным электрическим полям, а в электрооптических материалах — к ФР. На сходство процессов ФР в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3 указывают разные авторы [5—8]. Установлено, что в LiNbO_3 ФР коррелирует с аномальным

Таблица 1

Характеристика объектов исследования

Номер образца	Кристалл	Концентрация, вес. %	Молярное отношение	$\gamma(\lambda) = 0,5(n_e^3 r_{33} - n_o^3 r_{13}) \cdot 10^8 \text{ см} \cdot \text{В}^{-1}$			$\frac{I_{\max}}{\Delta n_{\text{ст}} - 1} f(\Gamma - 1)$ по (3), $\text{Вт} \times \text{см}^{-2}$
				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	LiTaO ₃ —Fe	0,005	0,965	1,26	1,21	1,14	500
5	LiTaO ₃ —Fe	0,06	0,965	—	1,18	1,14	200
6	LiTaO ₃ —Fe	0,17	0,965	—	—	1,14	10

* Кристалл выращен в окислительной атмосфере, все остальные — в инертной.

фотовольтаическим эффектом (АФЭ) [9, 10]. В [11, 12] рассматривался диффузионный механизм ФР, который проявляется при записи голограмм с большой пространственной частотой. В статье [13] показана также определенная роль пироэлектрического эффекта в явлениях ФР в кристаллах LiNbO₃.

Ниже приводятся результаты исследований зависимости ФР от интенсивности света и температуры в кристаллах LiTaO₃ и LiTaO₃—Fe.

1. Экспериментальная методика и результаты. Монокристаллы LiTaO₃, LiTaO₃—Fe выращивались методом Чохральского на установке «Донец-3» в инертной и окислительной атмосферах. Примесь вводилась в шихту в виде окиси железа в концентрациях 0,03; 0,3 и 0,1 вес.%. Содержание железа в выращенных кристаллах определялось методом химического анализа (табл. 1). Содержание неконтролируемых микропримесей в шихте составляло не более $5 \cdot 10^{-4}$ вес.%. Монодоменизация проводилась приложением вдоль оси X₃ постоянного электрического поля к кристаллу, нагретому до температуры, превышающей температуру Кюри на 10—20 К. Скорость охлаждения образцов составляла 50—70 К/ч.

Для исследований применялись монодоменные плоскопараллельные пластинки кристаллов танталата лития $10 \times 10 \text{ мм}^2$ толщиной 0,20; 0,31 и 8,00 мм. Измерения фоторефракции проводились с использованием поляризационно-оптической схемы с автоматической компенсацией разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами [14]. Источником излучения служил аргоновый лазер модели 171-08 фирмы «Спектра физик» со стабилизацией интенсивности света ($\pm 0,5\%$). Все измерения ФР осуществлялись сфокусированным пучком света диаметром 20 мкм, что обеспечило минимальное влияние поверхностных эффектов в объеме кристалла [15]. Температура определялась с точностью $\pm 0,5 \text{ К}$. Колебания естественного двулучепреломления, вызванные нестабильностью поддержания температуры в термостате, составляли не более $3 \cdot 10^{-8}$.

Для определения поглощенной световой энергии проводились измерения пропускания при выбранной длине волны и поляризации света. Спектры поглощения исследованных кристаллов измерялись на спектрофотометре «Spekord UV VIS» в неполяризованном свете в области 250—700 нм при комнатной температуре (рис. 1).

Фоторефракция оценивалась по изменению двулучепреломления $\Delta n = \Delta(n_e - n_o)$ (диапазон измерения 10^{-6} — 10^{-3}). Экспериментально измерялась временная зависимость $\Delta n = f(t)$, и для дальнейшего анализа использовалась стационарная величина ФР $\Delta n_{\text{ст}}$ [16].

Для оценки величины индуцированного в процессе ФР электрического поля измерялось изменение двойного лучепреломления кристаллов во внешнем электрическом поле, приложенном вдоль оси X₃. В таком

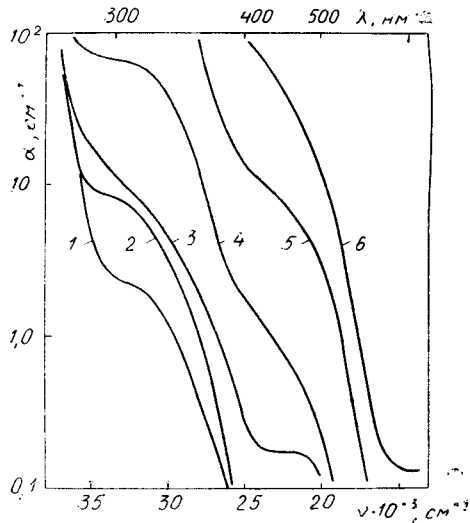


Рис. 1. Спектры поглощения кристаллов LiTaO_3 (1–3) и $\text{LiTaO}_3\text{—Fe}$ (4–6) (см. табл. 1).

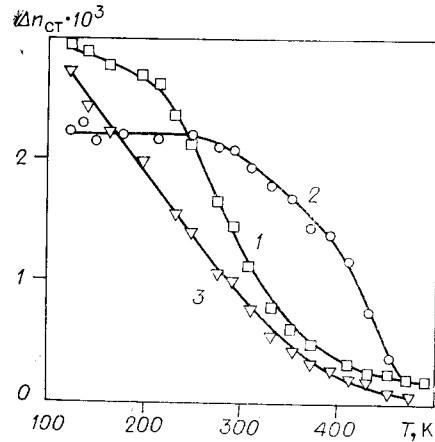


Рис. 2. Температурная зависимость $\Delta n_{\text{ст}}$ для образцов № 4 — 0,03; № 5 — 0,1; № 6 — 0,03 вес. % Fe.

Интенсивность возбуждающего света при $\lambda = 514,5$ нм выбрана с выполнением условия одинаковой поглощенной световой энергии и составляла для образцов № 4 — 115 (1), № 5 — 7,5 (2), № 6 — 4 Вт·см⁻² (3).

случае изменение двулучепреломления Δn определяется следующим образом:

$$\Delta n = \gamma E_{\text{вн}}, \quad (1)$$

где $\gamma = 0,5 (n_e^3 r_{33} - n_o^3 r_{13}) (n_e, n_o — \text{показатели преломления; } r_{33}, r_{13} — \text{электрооптические коэффициенты [17])}$. Для проверки возможностей компенсации $\Delta n_{\text{ст}}$ внешним электрическим полем подбирались такое значение $E_{\text{вн}}$, при котором изменение двойного лучепреломления за счет электрооптического эффекта (ЭОЭ) $\Delta n_{\text{ЭОЭ}} = \Delta n_{\text{ст}}$. Величина $\gamma(\lambda)$ использовалась для оценки индуцированных светом внутренних полей.

Результаты по температурной зависимости ФР в диапазоне 100 ÷ ÷ 500 К приведены на рис. 2, а по зависимости времени релаксации ФР после прекращения светового воздействия при различных температурах — на рис. 3. Из выражения $\tau = \tau_0 \exp(-Q/kT)$ определились энергии активации (табл. 2). Зависимость $\Delta n_{\text{ст}}$ от интенсивности света исследовалась на длине волны 514,5 нм в диапазоне от 0,3 до 10⁵ Вт/см² (рис. 4).

Обсуждение результатов. Полученные нами экспериментальные результаты по зависимости ФР в кристаллах LiTaO_3 и $\text{LiTaO}_3\text{—Fe}$ от температуры и интенсивности света подобны результатам, полученным на LiNbO_3 [16].

Таблица 2
Энергия активации (эВ) процесса фоторефракции LiTaO_3 и $\text{LiTaO}_3\text{—Fe}$

Температурный интервал, T, К	Образец № 3	0,03 вес. % Образец № 4	0,1 вес. % Образец № 5	0,3 вес. % Образец № 6	Условия определения
160—250	—	—	—	0,12	Термическая релаксация фоторефракции после светового воздействия $\ln \tau = f(T^{-1})$
250—420	—	—	—	0,27	
370—460	1,20	1,20	1,20	—	
250—420	—	0,13	—	0,13	По зависимости $\ln(\Delta n_{\text{ст}}) = f(T^{-1})$
410—480	—	—	0,66	—	

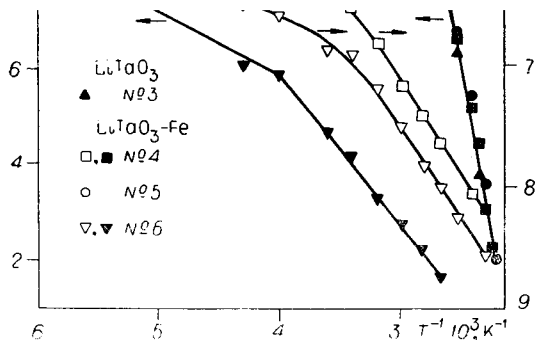


Рис. 3. Зависимости $\ln(\Delta n_{ст})$ и $\ln \tau$ от обратной температуры для LiTaO_3 и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$:

Образец № 3 — неактивированный, № 4 — 0,03; № 5 — 0,1; № 6 — 0,3 вес. % Fe. Интенсивность возбуждающего света $\lambda = 514,5$ нм выбрана с выполнением условия одинаковой поглощенной световой энергии.

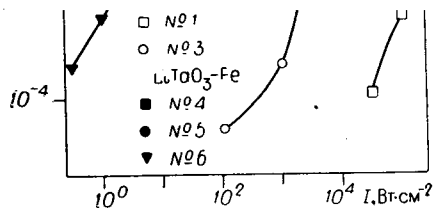


Рис. 4. Зависимость фоторефракции $\Delta n_{ст}$ от интенсивности света при $\lambda = 514,5$ нм) для кристаллов LiTaO_3 и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$

(характеристику образцов см. в табл. 1).

Согласно работам [9, 15] зависимость электрического поля, индуцированного фотовольтаическим эффектом, от интен-

сивности света (I) определяется выражением

$$E_{ст} = k\alpha I / (\sigma_0 + \beta I), \quad (2)$$

где k — фотовольтаическая константа, α — коэффициент поглощения, σ_0 — темновая проводимость, βI — фотопроводимость.

В кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3 фоторефракция и фотовольтаический эффект взаимосвязаны [9, 18]. Поэтому согласно (1) $\Delta n_{ст} = \gamma E_{ст}$. Это позволяет проверить справедливость выражения (2) по экспериментальной зависимости

$$E_{ст}^{-1} = (\sigma_0/k\alpha) I^{-1} + \beta/(k\alpha). \quad (3)$$

Эксперимент показал, что $(\Delta n_{ст})^{-1}$ является линейной функцией I^{-1} при $I \leq I_{max}$, причем значение I_{max} для различных образцов колеблется от 10 до 4000 $\text{Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ (см. табл. 1). Электрооптическая природа ФР и существование фототока в LiTaO_3 и $\text{LiTaO}_3\text{-Fe}$ подтверждают возможность компенсации $\Delta n_{ст}$ внешним электрическим полем согласно выражениям (1) и (2).

При больших интенсивностях в кристаллах LiTaO_3 ФР стремится к насыщению ($\Delta n_{ст} \rightarrow \Delta n_{ст}^{пр}$, см. рис. 4). При этом экспериментально наблюдались также явления, вызванные нагревом излучением. При интенсивностях $I > 10^5$ $\text{Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ нагрев приводит к растрескиванию кристалла в освещенной области.

В выражении (2) при больших I , когда $I \gg \sigma_0/\beta$, $E_{ст} = k\alpha/\beta$, и с учетом (1) $\Delta n_{ст} = k\alpha\gamma/\beta$. Однако из-за вызванного светом нагрева этим приближением нельзя пользоваться. Это, возможно, является одной из причин того, что в кристаллах с добавками железа при больших интенсивностях света $\Delta n_{ст}$ стремится к одному и тому же значению $\Delta n_{ст}^{пр} \approx 3 \cdot 10^{-3}$ (такая же величина получена для LiNbO_3 [16]). Для выяснения причины одинакового значения $\Delta n_{ст}^{пр}$ необходимы дополнительные исследования. Дальнейшего анализа требуют также большие величины $E_{ст}^{пр} \approx 240$ $\text{кВ} \cdot \text{см}^{-1}$, оцененные по $\Delta n_{ст}^{пр}$ с использованием выражений (2) и (1). Величина этого поля близка к величине пробойного поля. По-видимому, явления

внутреннего пробоя выступают в качестве принципиального ограничения для $\Delta n_{ст}^{пр}$.

Величина $\Delta n_{ст}$ слабо зависит от длины волны (в диапазоне 460—515 нм) при одинаковой поглощенной энергии. При этом индуцированное светом поле, согласно (1) и табл. 1, практически остается постоянным.

В неактивированных $LiTaO_3$ (см. рис. 4, табл. 1) с ростом отношения $Li:Ta$ $\Delta n_{ст}$ увеличивается. Исключением является образец № 2, в котором величина $\Delta n_{ст}$ меньше, чем для образцов № 1 и 3 (при $I = 10^5$ Вт · см⁻² $\Delta n_{ст} \approx 10^{-4}$). Так как образец № 2 выращивался в окислительной атмосфере и концентрация кислородных вакансий у него меньше, чем в других кристаллах, то можно предположить, что активными центрами ФР в неактивированных кристаллах $LiTaO_3$ являются кислородные вакансии. Наши результаты согласуются с результатами работы [5] по $LiTaO_3$ и выводами работы [9] по $LiNbO_3$, предполагающими кислородные вакансии в качестве активных центров ФР.

Изменение концентрации железа сильно влияет на температурную зависимость $\Delta n_{ст}$ в кристаллах $LiTaO_3$ (см. рис. 2). Выражение (2) с учетом (1) также характеризует зависимость $\Delta n_{ст} = f(T)$. По-видимому, γ [17] и α слабо зависят от температуры, а $\Delta n_{ст} = f(T)$ в основном определяется температурными зависимостями k , σ_0 и β . В $LiNbO_3$ и других материалах k уменьшается, а β растет с повышением температуры [2]. Наши результаты по $\Delta n_{ст} = f(T)$ в $LiTaO_3$ свидетельствуют о подобных температурных зависимостях k и β .

На рис. 3 приведены результаты обработки кривых $\Delta n_{ст} = f(T)$ в координатах $\ln(\Delta n_{ст}) = f(T^{-1})$ и $\ln \tau = f(T^{-1})$. Зависимость $\ln \tau$ характеризует релаксацию ФР от температуры в процессе отжига и делокализацию объемного заряда из-за темновой проводимости. Для образцов № 3—5 при температурах $T > 370$ К энергии активации термической релаксации одинаковы и равны 1,2 эВ, что близко к результатам работы [7]. Для образца № 6 энергия активации существенно отличается и зависит от температурной области (см. табл. 2). Сильное уменьшение энергии активации при отжиге в кристалле № 6 $LiTaO_3-Fe$ (0,3 вес.%) указывает на существенное изменение природы центров захвата с увеличением концентрации. Аналогичное явление в $LiNbO_3-Fe$ (0,3 вес.%) наблюдалось в [16, 20]. В последней работе детально изучена темновая проводимость в кристаллах $LiNbO_3-Fe$ в зависимости от концентрации железа и обнаружено уменьшение энергии активации темновой проводимости в кристаллах с большой концентрацией примеси.

Во всех исследованных кристаллах $LiTaO_3$ (см. табл. 2, рис. 2 и 3) энергии активации во время воздействия света меньше, чем в процессе отжига. Физический смысл энергии активации для зависимости $\ln(\Delta n_{ст}) = f(T^{-1})$ является более неопределенным.

ВЫВОДЫ

1. В кристаллах $LiTaO_3$ и $LiTaO_3-Fe$ ФР коррелирует с фотовольтаическим эффектом.

2. Стационарное значение фоторефракции в кристаллах $LiTaO_3$ сильно зависит от интенсивности света и в наиболее чистых образцах не достигает насыщения $\Delta n_{ст}$ даже при $I > 10^5$ Вт · см².

3. В кристаллах $LiTaO_3-Fe$ (от 0,03 до 0,3 вес.%) насыщение ФР наступает при различных интенсивностях, но достигает одной и той же предельной величины: $\Delta n_{ст}^{пр} \approx 3 \cdot 10^{-3}$.

Авторы выражают благодарность А. В. Гулбису за ценные замечания при обсуждении работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Гюнтер П., Мишерон Ф. Эффекты фотопреломления и фототоки в $\text{KNbO}_3\text{—Fe}$.— *Автометрия*, 1978, № 2.
2. Фридкин В. М., Попов Б. Н. Аномальный фотовольтаический эффект в сегнетоэлектриках.— *УФН*, 1978, т. 126, вып. 4.
3. Шварц К. К. Фотопреломление в кристаллах LiNbO_3 и поиск новых электрооптических материалов для записи оптической информации.— В кн.: *Несеребряные и необычные среды для голографии*. Л.: Наука, 1978, с. 31—50.
4. Chen F. S. Optically Induced Charge of Refractive Indexes in LiNbO_3 and LiTaO_3 .— *J. Appl. Phys.*, 1969, vol. 40, p. 3389—3396.
5. Ангерт Н. Б., Пашков В. А., Соловьева Н. М. Оптически наведенная неоднородность показателя преломления в кристаллах LiNbO_3 и LiTaO_3 .— *ЖЭТФ*, 1972, т. 62, вып. 5.
6. Теуя Х. Эффект оптического искажения в кристаллах LiTaO_3 , легированных ионами переходных металлов.— *Изв. АН СССР. Сер. физ.*, 1977, т. 41, № 4.
7. Tsua H. Optical Damage in Transition—Metal—Doped LiTaO_3 .— *J. Appl. Phys.*, 1975, vol. 46, p. 4323—4333.
8. Krätzig E., Orłowski R. LiTaO_3 as Holographic Storage Material.— *Appl. Phys.*, 1978, vol. 15, p. 133—139.
9. Glass A. M., Von der Linde D., Negran T. J. High-Voltage Bulk Photovoltaic Effect and Photorefractive Process in LiNbO_3 .— *Appl. Phys. Lett.*, 1974, vol. 25, p. 233—235.
10. Баркан И. Б., Пестряков Е. В., Этин М. В. Исследование импульсной голографической записи в монокристалле LiNbO_3 с примесью Fe.— *Автометрия*, 1976, № 4.
11. Amodei J. J. Electron Diffusion Effects During Holographic Recording in Insulators.— *Appl. Phys. Lett.*, 1974, vol. 18, p. 22—24.
12. Винецкий В. Л. и др. Механизм записи голограмм в кристаллах и усиление когерентных световых пучков.— *Препринт № 15*. Киев: изд. ИФ АН УССР, 1976.
13. Shein L. B., Cressman P. J., Cross L. E. Pyroelectric Induced Optical Damage in LiNbO_3 .— *J. Appl. Phys.*, 1978, vol. 49, p. 798—800.
14. Аугустов П. А., Готлиб В. И. Влияние электрооптического поля на фотопреломление в ниобате лития.— *Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук*, 1976, № 3.
15. Augustov P. A., Shvarts K. K. Surface Recombination and Photorefractive Process in $\text{LiNbO}_3\text{—Fe}$ Crystals.— *Appl. Phys.*, 1979, vol. 18, p. 399—401.
16. Augustov P. A., Shvarts K. K. The Temperature and Light Intensity Dependence of Photorefractive Process in LiNbO_3 .— *Appl. Phys.*, 1980, vol. 21, p. 191—194.
17. Сонин А. С., Василевская А. С. *Электрические кристаллы*. М.: Атомиздат, 1974.
18. Glass A. M. et al. Excited State Polarization Bulk Photovoltaic Effect and the Photorefractive Effect in Electrically Polarized Media.— *J. Electr. Mater.*, 1975, vol. 4, p. 915—943.
19. Зейналлы А. Х., Коган Л. С., Тимофеев А. Л. Влияние состава на голографическую запись в кристаллах ниобата лития.— *ФТТ*, 1979, т. 21, вып. 10.
20. Barkan I. B., Entin M. V., Marennikov S. I. Conductivity of Fe-Doped LiNbO_3 Crystals.— *Phys. Stat. Sol. (a)*, 1977, vol. 44, p. K91—K94.

Поступила в редакцию 8 августа 1980 г.

УДК 537.311.1

О. А. ГУДАЕВ, В. А. ГУСЕВ, В. А. ДЕТИНЕНКО,
А. П. ЕЛИСЕЕВ, В. К. МАЛИНОВСКИЙ
(Новосибирск)

УРОВНИ ЭНЕРГИИ В ЗАПРЕЩЕННОЙ ЗОНЕ КРИСТАЛЛОВ $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$, $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$

Введение. Силлениты, в частности силлениты германия и кремния,— широко известный в настоящее время класс материалов [1]. Вопрос об энергетическом спектре уровней в кристаллах $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ (BGO) и $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ (BSO) обсуждался ранее авторами [2—4]. Работы же о природе центров в этих кристаллах и их роли в процессах переноса заряда практически отсутствуют.