

03,09

## Нестационарная фотоэдс в периодически поляризованном кристалле $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$

© М.А. Брюшинин<sup>1</sup>, В.В. Куликов<sup>1</sup>, И.А. Соколов<sup>1</sup>, Е.Н. Савченков<sup>2</sup>, Н.И. Буримов<sup>2</sup>, С.М. Шандаров<sup>2</sup>, А.Р. Ахматханов<sup>3</sup>, М.А. Чувакова<sup>3</sup>, В.Я. Шур<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Томск, Россия

<sup>3</sup> Уральский федеральный университет, Екатеринбург, Россия

E-mail: mb@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 3 ноября 2022 г.

В окончательной редакции 3 ноября 2022 г.

Принята к публикации 25 ноября 2022 г.

Изучается диффузионный режим возбуждения нестационарной фотоэдс в периодически поляризованном кристалле  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  на длине волны света  $\lambda = 457 \text{ nm}$ . Возбуждение сигнала осуществляется вдоль полярной оси кристалла, в данной геометрии исследуются зависимости амплитуды сигнала от частоты фазовой модуляции света, интенсивности и пространственной частоты интерференционной картины. Анализ указанных зависимостей позволяет определить фотоэлектрические характеристики материала — тип, величину и время релаксации фотопроводимости, а также диффузионную длину носителей заряда.

**Ключевые слова:** нестационарная фотоэдс, периодическая доменная структура, ниобат лития.

DOI: 10.21883/FTT.2023.02.54291.519

### 1. Введение

Периодически поляризованный ниобат лития уже нашел применение в прикладной оптике, но при этом остается объектом представляющим интерес и для фундаментальных исследований. Толщина стенок, разделяющих домены с разной поляризацией, имеет порядок величины постоянной кристаллической решетки, и поэтому изучение переноса заряда вдоль таких стенок столь же актуален, как и в ставших популярными двумерных структурах на основе углерода.

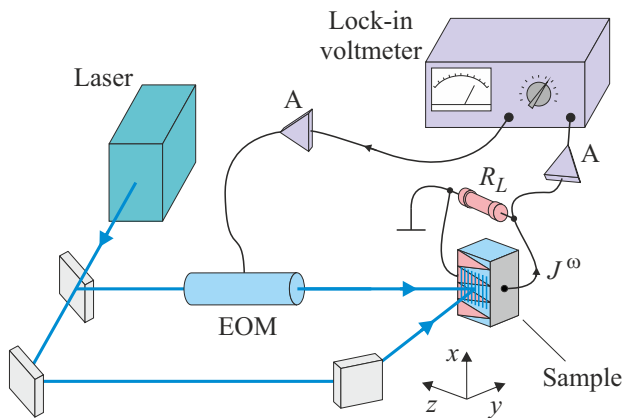
Экспериментальные исследования периодически поляризованного ниобата лития преимущественно основаны на оптических методиках, в частности, на дифракции света [1,2]. Теоретический анализ распространения светового пучка и голографической записи в данном материале показал уменьшение оптически индуцированного изменения показателя преломления (оптического повреждения), а также возможность записи голограмм на пространственных частотах, определяемых комбинацией векторов доменной решетки и записывающей интерференционной картины [3,4]. Экспериментальные исследования электрических свойств материала включают в себя как измерения проводимости отдельных доменных стенок, так и их массива [5,6]. Среди использовавшихся ранее оптоэлектронных методик следует отметить исследование эффекта нестационарной фотоэдс в *монокристаллическом*  $\text{LiNbO}_3$ , позволившее определить концентрацию примесных центров железа и фотовольтаическое поле [7]. Изучение периодически поляризованного ниобата

лития с помощью данной методики не осуществлялось до настоящего времени.

Эффект нестационарной фотоэдс наблюдается в виде переменного электрического тока, возникающего в полупроводнике при освещении колеблющейся интерференционной картиной [8]. Ток возникает вследствие периодических смещений распределений фотопроводимости и поля пространственного заряда относительно друг друга. Эффект присутствует как в centrosymmetric, так и в noncentrosymmetric средах. Методика тестирования полупроводников, основанная на данном эффекте, позволяет определить такие параметры, как тип и величина проводимости, время жизни и диффузионная длина носителей заряда, концентрация ловушечных центров [9,10]. В данной работе методика впервые применяется к материалу с периодической доменной структурой — кристаллу  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ .

### 2. Экспериментальная установка

Схема экспериментальной установки для исследования нестационарной фотоэдс представлена на рис. 1. Свет одночастотного лазера с длиной волны  $\lambda = 457 \text{ nm}$  и мощностью  $P_{out} = 200 \text{ mW}$  разделяется на два луча, один из которых модулируется по фазе с помощью электрооптического модулятора. Амплитуда фазовой модуляции составляет  $\Delta = 0.36$ . Лучи направляются под заданным углом на исследуемый образец, где формируется интерференционная картина со средней интенсивностью  $I_0$ , контрастом  $m = 0.26$  и пространственной ча-



**Рис. 1.** Экспериментальная установка для исследования эффекта нестационарной фотоэдс в кристалле  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ .  $BS$  — светоделитель,  $EOM$  — электрооптический модулятор,  $M$  — зеркало.

стотой  $K$ . Плоскость поляризации лазерного излучения перпендикулярна плоскости падения. Ток, возникающий в кристалле, создает соответствующее напряжение на нагрузочном резисторе  $R_L = 1.0 \text{ M}\Omega$  ( $100 \text{ k}\Omega$  для диапазона частот до  $150 \text{ kHz}$ ). Это напряжение усиливается и измеряется селективным вольтметром. При расчете тока учитывается емкость кристалла и входная емкость предусилителя  $C_{cr} + C_{in} = 6.0 \text{ pF}$ .

В данной работе проводятся эксперименты с тем же кристаллом  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ , что исследовался ранее в работе [2]. Доменная структура представляет собой клиновидные области, поляризованные в противоположных направлениях оси  $z$  и чередующиеся вдоль оси  $x$  кристалла с периодом  $8.79 \mu\text{m}$  (рис. 1). Размеры образца —  $8.0 \times 2.0 \times 1.0 \text{ mm}$ . Передняя и задняя поверхности ( $8.0 \times 1.0 \text{ mm}$ ) имеют оптическое качество. На боковых поверхностях ( $8.0 \times 2.0 \text{ mm}$ ) нанесены электроды с использованием серебряной пасты. Вектор записываемой решетки и возбуждаемый нестационарный голографический ток параллельны оптической оси кристалла.

### 3. Результаты

Эксперименты с нестационарной фотоэдс обычно начинают с относительно простой задачи — определения фазы детектируемого сигнала и выяснения типа проводимости материала — электронного или дырочного. В исследуемом  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  фаза сигнала соответствует электронному типу проводимости.

Зависимости амплитуды нестационарной фотоэдс от частоты фазовой модуляции света  $\omega$ , также являющейся частотой колебаний интерференционной картины, представлены на рис. 2. На зависимости присутствуют растущий, частотно-независимый и спадающий участки. Такое поведение обусловлено изменением амплитуд колебаний зарядовых решеток при увеличении частоты. В области

низких частот решетка фотовозбужденных электронов зоны проводимости и решетка поля пространственного заряда, сформированная на глубоких ловушечных центрах, отслеживают смещения интерференционной картины. Пространственный сдвиг между решетками поддерживается примерно равным  $\pi/2$ , что не позволяет достичь большой величины дрейфовой компоненты тока. С увеличением частоты амплитуда колебаний решетки поля пространственного заряда уменьшается — решетка становится практически неподвижной. В то же время решетка фотопроводимости продолжает отслеживать смещения интерференционной картины. Периодическое смещение распределений относительно друг друга увеличивается, обуславливая большую амплитуду тока. В области очень высоких частот обе решетки становятся неподвижными, результирующий ток уменьшается. Теория эффекта нестационарной фотоэдс дает следующее выражение, описывающее данное поведение сигнала [9,10]:

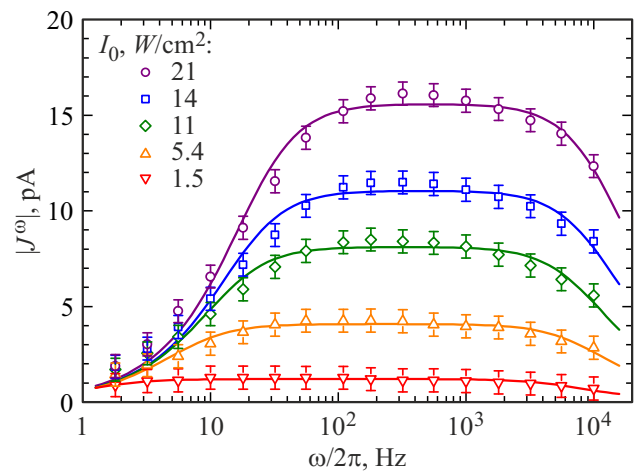
$$J^\omega = \frac{-Sm^2(\Delta/2)\sigma_0 E_D i \omega \tau_M}{1 - \omega^2 \tau \tau_M + i\omega[\tau + \tau_M(1 + K^2 L_D^2)]}, \quad (1)$$

где  $S$  — площадь электрода,  $\sigma_0$  — удельная фотопроводимость материала,  $E_D$  — диффузионное поле,  $\tau_M = \epsilon \epsilon_0 / \sigma_0$  — время максвелловской релаксации [11],  $\tau$  и  $L_D$  — время жизни и диффузионная длина электронов,  $\epsilon = 30$  — диэлектрическая проницаемость,  $\epsilon_0$  — электрическая постоянная. Частоты среза, разделяющие участки частотной зависимости, определяются как

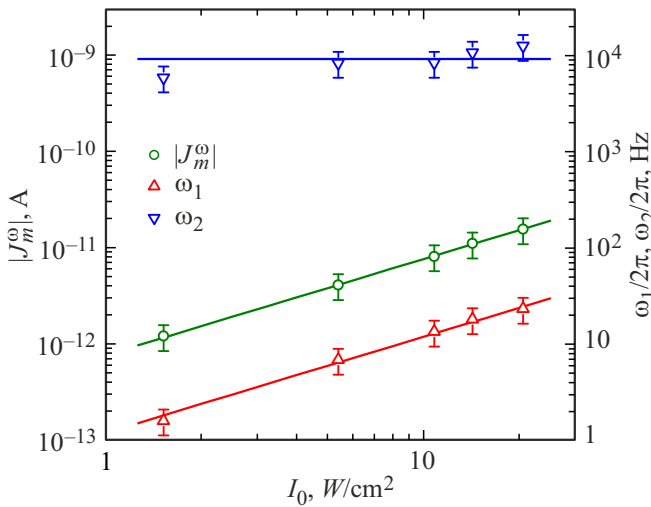
$$\omega_1 = [\tau + \tau_M(1 + K^2 L_D^2)]^{-1}, \quad (2)$$

$$\omega_2 = \omega_1 + (1 + K^2 L_D^2) / \tau. \quad (3)$$

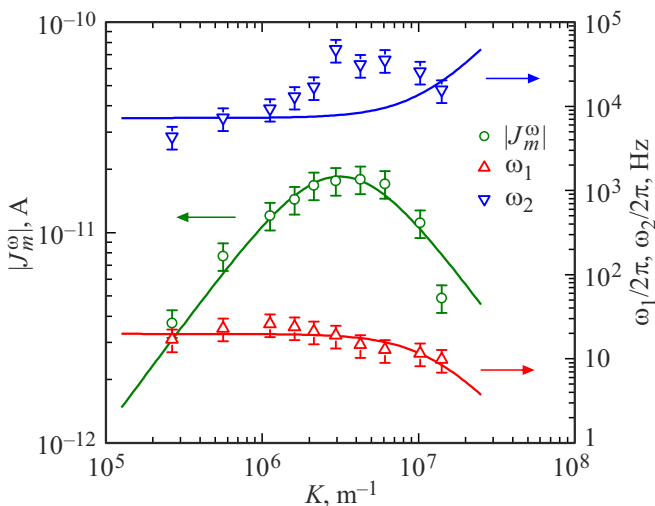
Зависимость сигнала от интенсивности света является важнейшей характеристикой всех фотоэлектрических явлений, в том числе и изучаемого эффекта нестационарной фотоэдс (рис. 3). Линейность зависимостей  $|J^\omega(I_0)|$



**Рис. 2.** Частотные зависимости амплитуды нестационарной фотоэдс, измеренные при различных интенсивностях света.  $K = 1.6 \mu\text{m}^{-1}$ .



**Рис. 3.** Зависимости максимальной амплитуды нестационарной фотоэдс и частот среза от интенсивности света.  $K = 1.6 \mu\text{m}^{-1}$ .



**Рис. 4.** Зависимости максимальной амплитуды нестационарной фотоэдс и частот среза от пространственной частоты интерференционной картины.  $I_0 = 21 \text{ W/cm}^2$ .

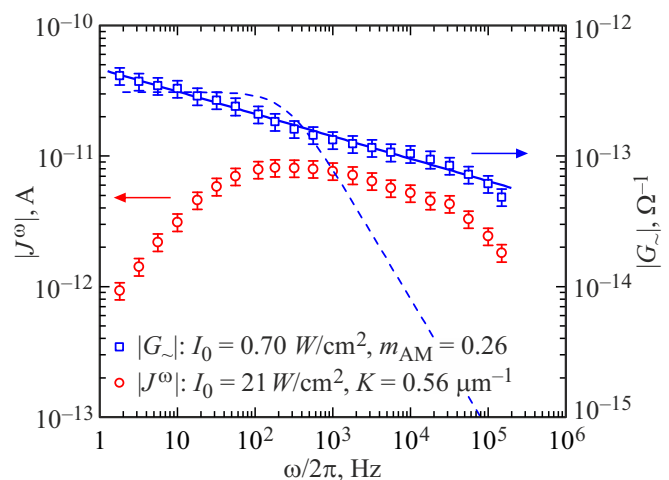
и  $\omega_1(I_0)$  свидетельствует о соответствующей линейности фотопроводимости и рекомбинации электронов. На это же указывает относительная независимость второй частоты среза от интенсивности света:  $\omega_2 \approx \text{const}(I_0)$ .

В отсутствие внешнего электрического поля амплитуда решетки поля пространственного заряда определяется величиной диффузионного поля, которое в свою очередь зависит от пространственной частоты:  $E_D = (k_B T/e)K$ , где  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура кристалла,  $e$  — элементарный заряд. Вполне очевидно, что ток, являющийся результатом взаимодействия решеток фотопроводимости и поля, также должен быть функцией пространственной частоты. Данная зависимость была получена экспериментально (рис. 4). Уменьшение

амплитуды тока в области высоких пространственных частот обусловлено диффузионным „расплыванием“ колеблющейся составляющей решетки фотопроводимости. Максимум сигнала достигается на пространственной частоте  $K = L_D^{-1}$ . Эта особенность используется для определения диффузионной длины носителей заряда:  $L_D = 0.32 \mu\text{m}$  для исследуемого  $MgO:LiNbO_3$ .

Частоты среза  $\omega_1, \omega_2$  в области малых  $K$  определяются исключительно характерными временами  $\tau_M$  и  $\tau$ , что также используется в задачах определения фотоэлектрических параметров. Для высокоомных материалов обычно  $\tau_M \gg \tau$ , и поэтому  $\omega_1 \approx \tau_M^{-1}$  и  $\omega_2 \approx \tau^{-1}$ . Из зависимостей на рис. 4 находим  $\tau_M = 8.0 \text{ ms}$  и  $\tau = 22 \mu\text{s}$ . Удельная фотопроводимость составляет  $\sigma_0 = 3.3 \cdot 10^{-10} \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$  при интенсивности света  $I_0 = 21 \text{ W/cm}^2$ .

Зависимость  $\omega_2(K)$  на рис. 4 заметно отличается от теоретической, поэтому проведены измерения нестационарной фотоэдс и отклика фотопроводимости на амплитудно-модулированный свет в расширенном частотном диапазоне (рис. 5). Сходство зависимостей в области частот 0.1–100 kHz указывает на связь нестационарной фотоэдс с процессом релаксации фотопроводимости. Обе зависимости демонстрируют необычное поведение: вместо ожидаемого спада амплитуд сигналов обратно пропорционально частоте наблюдаются зависимости вида  $|J^\omega(\omega)|, |G_\sim(\omega)| \propto \omega^{-0.17}$ . В данной ситуации определение значений частоты среза  $\omega_2$  и времени  $\tau$  из экспериментальных кривых становится проблематичным. Сопротивление образца можно оценить из зависимости  $|G_\sim(\omega)|$  следующим образом:  $R_0 = G_0^{-1} = (G_\sim(0)/m)^{-1} = 630 \text{ G}\Omega$  для  $I_0 = 0.7 \text{ W/cm}^2$ . Удельная фотопроводимость, пересчитанная к уровню интенсивности экспериментов с нестационарной фотоэдс ( $I_0 = 21 \text{ W/cm}^2$ ), составляет  $2.4 \cdot 10^{-10} \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ .



**Рис. 5.** Частотные зависимости амплитуды нестационарной фотоэдс и амплитуды отклика фотопроводимости. Для зависимости  $|G(\omega)|$  показана аппроксимация стандартным выражением  $|1 + i\omega\tau|^{-1}$  и степенной функцией  $\omega^{-0.17}$ .

#### 4. Обсуждение результатов

Поведение сигнала нестационарной фотоэдс в периодически поляризованном  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  хорошо описывается в рамках стандартной теории эффекта [8] в довольно широкой области частот фазовой модуляции ( $10^0 - 10^4$  Hz). Несмотря на то, что кристалл ниобата лития известен своими фотовольтаическими свойствами, никакого непосредственного их проявления в исследуемом эффекте не обнаружено. Первая причина этого — технологическая: допирование кристалла оксидом магния уменьшает фотовольтаическое поле, и тем самым позволяет уменьшить оптическое повреждение образцов. Создание периодической доменной структуры также уменьшает усредненное фотовольтаическое поле и связанное с ним изменение показателя преломления света [3].

Легирование и создание периодической структуры не ликвидируют фотогальванический эффект полностью, поэтому попробуем оценить его вклад в эффект нестационарной фотоэдс. Основное уравнение, описывающее формирование поля пространственного заряда в фоторефрактивных кристаллах, записывается следующим образом [11]:

$$\frac{\partial E_{sc}}{\partial t} = -\frac{m(iE_D + E_0 + E_G) + E_{sc}}{\tau_M(1 + K^2L_D^2 - iKL_0)}, \quad (4)$$

где  $E_{sc}$  — комплексная амплитуда напряженности электрического поля пространственного заряда,  $L_0$  — дрейфовая длина,  $E_0$  — напряженность внешнего электрического поля,  $E_G$  — фотовольтаическое поле. Используя это уравнение, в работе [8] было получено выражение для комплексной амплитуды нестационарной фотоэдс, возбуждаемой во внешнем поле в отсутствие фотогальванического эффекта ( $E_0 \neq 0, E_G = 0$ ):

$$j^\omega = \frac{m^2\Delta}{4} \sigma_0 \left[ \frac{i2E_0 - \omega\tau_M(iE_D + E_0)}{1 + i\omega\tau_M(1 + K^2L_D^2 + iKL_0)} + \frac{-i2E_0 - \omega\tau_M(iE_D - E_0)}{1 + i\omega\tau_M(1 + K^2L_D^2 - iKL_0)} \right]. \quad (5)$$

По аналогии с уравнением (4) заменим  $E_0$  на  $E_0 + E_G$  в выражении (5). Затем полагая внешнее поле равным нулю, получаем выражение для интересующего нас случая ( $E_0 = 0, E_G \neq 0$ ):

$$j^\omega = \frac{m^2\Delta}{2} \sigma_0 E_D \frac{-i\omega\tau_M}{1 + i\omega\tau_M(1 + K^2L_D^2)}. \quad (6)$$

Данное выражение не содержит никакого фотогальванического вклада и в точности соответствует случаю диффузионного режима возбуждения ( $E_0, E_G = 0$ ). Это подтверждает результаты экспериментов с периодически поляризованным  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ , в которых никакое проявление фотогальванического эффекта не обнаруживается. Следует отметить, что представленный вывод

выражения (6) из выражений (4), (5) не является строгим, влияние фотогальванического эффекта на процесс возбуждения нестационарной фотоэдс, вероятно, будет выявлено при подробном теоретическом рассмотрении эффекта.

Принято считать, что электрическая проводимость в  $\text{LiNbO}_3$  реализуется за счет поляронного и прыжкового механизмов переноса заряда [12,13]. На это, в частности, указывает растянутая во времени релаксация различных физических величин, таких как концентрации носителей заряда и заряженных центров, коэффициент поглощения света. Такая релаксация хорошо описывается так называемой KWW-функцией (Kohlrausch–Williams–Watts):  $f(t) = \exp[-(t/\tau)^\beta]$ , где  $0 < \beta < 1$  [12–14]. Растянутая экспонента имеет аналог, описывающий процессы в частотной области, — HN-функцию (Havriliak–Negami):

$$f(\omega) = [1 + (i\omega\tau)^\alpha]^{-\gamma}. \quad (7)$$

где  $0 < \alpha \leq 1$ ,  $\gamma > 0$  и  $\alpha\gamma \leq 1$ . Степенная функция, использованная нами при аппроксимации зависимости  $|G(\omega)|$  на рис. 5, может рассматриваться как часть HN-функции с  $\alpha\gamma = 0.17$  и  $\omega\tau \gg 1$ . Причины появления подобной недебаевской релаксации в  $\text{LiNbO}_3$  окончательно не установлены, при эмпирическом подходе к данной проблеме предполагается, что наблюдаемые зависимости являются комбинацией множества процессов релаксации с различными постоянными времени  $\tau$  [13].

Следует отметить, что полученные значения фотоэлектрических параметров являются усредненными по периоду доменной структуры. Нами была предпринята попытка выявить периодичность наблюдаемого эффекта при смещении кристалла в направлении оси  $x$  и при освещении интерференционной картиной, сфокусированной цилиндрической линзой в узкую полосу параллельную оси  $z$ . В случае успеха это позволило бы оценить относительные вклады объема доменов и доменных стенок в амплитуду сигнала и соответствующие фотоэлектрические параметры. К сожалению, указанную периодичность не удалось обнаружить. По всей видимости, это связано с невозможностью получить достаточно тонкие перетяжки световых пучков ( $\sim 1-3 \mu\text{m}$ ) по всей толщине кристалла (2 mm). Использование тонких образцов является очевидным решением проблемы и рассматривается нами как направление будущих экспериментальных исследований.

#### 5. Заключение

В работе впервые осуществлено возбуждение нестационарной фотоэдс в периодической доменной структуре на основе кристалла  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ . Сигнал продемонстрировал поведение характерное для диффузионного режима записи зарядовых решеток. Анализ измеренных зависимостей сигнала от параметров освещения показал хорошую совместимость с теорией эффекта, развитой ранее для обычных полупроводниковых материалов без

фотогальванического эффекта и периодической доменной структуры. На частотных зависимостях нестационарной фотоэдс и отклика фотопроводимости обнаружен участок медленного спада сигналов, характерный для поляронного и прыжкового механизмов переноса заряда в  $LiNbO_3$ . Фотоэлектрические параметры материала определены для длины волн света  $\lambda = 457$  nm.

## Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках госзадания на 2020-2022 годы (задание FEWM-2020-0038/3). Работа выполнена с использованием оборудования УЦКП „Современные нанотехнологии“ УрФУ (рег. № 2968), поддержанным министерством науки и высшего образования Российской Федерации (проект 075-15-2021-677).

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] M. Müller, E. Soergel, K. Buse, C. Langrock, M.M. Fejer. *J. Appl. Phys.* **97**, 4, 044102 (2005).
- [2] E.N. Savchenkov, A.V. Dubikov, D.E. Kuzmich, A.E. Sharaeva, S.M. Shandarov, N.I. Burimov, M.A. Chuvakova, A.R. Akhmatkhanov, V.Y. Shur. *Opt. Mater.* **122**, B, 111813 (2021).
- [3] M. Taya, M.C. Bashaw, M.M. Fejer. *Opt. Lett.* **21**, 12, 857 (1996).
- [4] B. Sturman, María Aguilar, F. Agulló-López, V. Pruneri, P.G. Kazansky. *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 10, 2641 (1997).
- [5] M. Schröder, A. Haußmann, A. Thiessen, E. Soergel, T. Woike, L.M. Eng. *Adv. Funct. Mater.* **22**, 18, 3936 (2012).
- [6] C.S. Werner, S.J. Herr, K. Buse, B. Sturman, E. Soergel, C. Razzaghi, I. Breunig. *Sci. Rep.* **7**, 9862 (2017).
- [7] H. Veenhuis, K. Buse, E. Krätzig, N. Korneev, D. Mayorga. *J. Appl. Phys.* **86**, 5, 2389 (1999).
- [8] M.P. Petrov, I.A. Sokolov, S.I. Stepanov, G.S. Trofimov. *J. Appl. Phys.* **68**, 5, 2216 (1990).
- [9] S. Stepanov. In: *Handbook of advanced electronic and photonic materials and devices*, v. 2: Semiconductors devices / Ed. H.S. Nalwa. Academic Press, Burlington (2001). P. 205.
- [10] I.A. Sokolov, M.A. Bryushinin. *Optically induced space-charge gratings in wide-bandgap semiconductors: techniques and applications*. Nova Science Publishers, Inc., N.Y. (2017). 229 p.
- [11] М.П. Петров, С.И. Степанов, А.В. Хоменко. *Фоторефрактивные кристаллы в когерентной оптике*. Наука, СПб. (1992). 320 с.
- [12] B. Sturman, M. Carrascosa, F. Agullo-Lopez. *Phys. Rev. B* **78**, 24, 245114 (2008).
- [13] M. Imlau, H. Badorreck, C. Merschjann. *Appl. Phys. Rev.* **2**, 4, 040606 (2015).
- [14] B. Sturman, E. Podivilov, M. Gorkunov. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 17, 176602 (2003).

Редактор Е.В. Толстякова