

Спонтанная фоторефракция в $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ ($x = 0.014$)

© М.Е. Гужва, В. Клееманн*, П.А. Марковин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

*Лаборатория прикладной физики, Университет Дуйсбурга,
Д-47048 Дуйсбург, Германия

(Поступила в Редакцию 25 ноября 1996 г.)

Исследованы температурные изменения главных значений показателя преломления в $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ ($x = 0.014$) в интервале температур 17–275 К при разных режимах освещения образца светом с энергией 1.96 eV. Выделен спонтанный фоторефрактивный вклад δn^{ph} в температурные изменения показателя преломления $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$, возникающий после облучения образца в сегнетофазе (температура перехода $T_c = 32$ К) и сохраняющийся в парафазе при нагревании вплоть до 150 К. Оценена величина фотоиндуцированной поляризации.

Допирование квантового параэлектрика SrTiO_3 ионами Ca^{2+} ($x > 0.0018$) индуцирует в нем низкотемпературную сегнетофазу [1]. Результаты исследований процессов фотопереноса заряда в SrTiO_3 (STO) и $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ (SCT) [2,3] показали, что облучение образцов светом с энергией, большей 1.85 eV, создает фотоносители обоих типов: дырки и электроны, часть которых заполняет соответствующие ловушки. Внутреннее поле в сегнетофазе и внешнее электрическое поле могут приводить к разделению фотоносителей, созданию пространственного заряда при их локализации и, как следствие, к возникновению фоторефрактивного эффекта [4]. В [2,3] было показано, что фотоионизация светом энергией 1.96 eV в SCT ($x = 0.007$ и 0.12) во внешнем электрическом поле и во внутреннем дполяризующем поле ниже температуры Кюри T_c приводит к фотоиндуцированному вкладу в показатель преломления и двупреломления света, который сохраняется в течение длительного времени как после выключения внешнего поля, так и при нагревании выше T_c .

В настоящей работе интерферометрическим методом [5] исследован спонтанный фоторефрактивный эффект, возникающий из-за локализации фотоносителей, возбужденных светом 1.96 eV (гелий-неоновый лазер), в собственном внутреннем поле в сегнетофазе $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ ($x = 0.014$), температура Кюри которого $T_c = 32$ К [1,6]. В SCT исследуемого состава при температуре $T_a = 148$ К [6] происходит структурный фазовый переход из кубической (O_h) в тетрагональную фазу (D_{4h}) (аналогичный переходу в STO при $T_a = 105$ К). Для того чтобы ниже температуры перехода T_a измерять изменения главных значений показателя преломления n_a и n_c , монокристаллические образцы вырезались в плоскости $(110)_c$. Размер образцов составлял $\approx 4 \times 2 \times 1$ мм. Тетрагональная ось c была направлена вдоль длинной стороны параллелепипеда [7], а оси a и b — вдоль коротких сторон. По результатам поляризационной микроскопии при температурах ниже T_a образцы были структурно-монокристаллическими.

Интерферометрическая методика [5] позволяла измерять температурные изменения относительного оптического пути света $\delta\psi(T)$, прошедшего через кристалл,

связанные с изменением показателя преломления и толщины образца. Учитывая, что в номинально чистом STO $\delta\psi(T) \approx \delta n(T)$ [8] с точностью примерно 20%, мы полагали $\delta\psi(T) \approx \delta n(T)$.

На рис. 1 представлены температурные изменения главных значений показателя преломления в $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ (0.014), выполненные при двух различных режимах освещения после охлаждения образца в темноте от комнатной температуры. В первом случае образец освещался при 17 К и сразу же медленно нагревался со скоростью ≈ 1 К/мин (кривые 1, 3). Облучение осуществлялось светом измерительного луча интерферометра, интенсивность которого была равна $0.1 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ (минимально возможная в нашем эксперименте). Во втором случае свет измерительного луча включался выше T_c при 45 К, и затем образец нагревался с той же скоростью (кривые 2, 4).

При освещении образцов SCT в сегнетофазе ($T < T_c$) и последующем нагревании показатель преломления вначале увеличивается, а при $T > T_c$ начинает уменьшаться (кривые 1, 3 на рис. 1) в отличие от монотонного уменьшения $\delta n(T)$ во всем интервале температур в чистом STO (кривая 5). Такое поведение $\delta n_{a,c}(T)$ в $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ обусловлено спонтанным полярным вкладом в рефракцию света ниже T_c , возникающим за счет квадратичного по поляризации электрооптического эффекта [6].

При освещении образца выше T_c (кривые 2, 4) главные значения показателя преломления SCT монотонно убывают при нагревании, однако величины температурных изменений $\delta n_{a,c}(T)$ отличаются от измеренных при засветке в сегнетофазе (кривые 1, 3). Только при $T > 150$ К изменения $\delta n_{a,c}(T)$ для обоих режимов освещения одинаковы. Эти результаты показывают, что при освещении SCT в сегнетоэлектрической области появляется дополнительный, фотоиндуцированный, вклад в рефракцию света δn^{ph} , температурные изменения которого в парафазе частично компенсируют уменьшение показателя преломления при нагревании. В номинально чистом титанате стронция температурные изменения рефракции $\delta n(T)$ не зависели от режимов освещения образца.

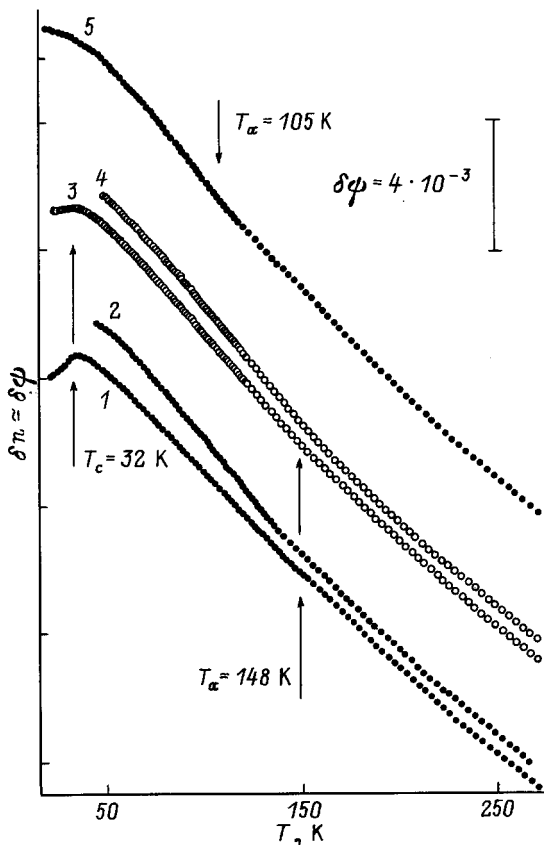


Рис. 1. Температурные изменения главных значений показателя преломления в монокристаллах $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ с $x = 0.014$. Нагревание после освещения образца в сегнетофазе: 1 — δn_a , 3 — δn_c , нагревание при освещении выше T_c : 2 — δn_a , 4 — δn_c , 5 — $\delta n_a(T)$ для SrTiO_3 . Температуры фазовых переходов указаны стрелками.

Величину и температурную зависимость фотоиндуцированного вклада для $\delta n_a(T)$ и $\delta n_c(T)$ в парафазе можно оценить как разность кривых 1 и 2, 3 и 4 (рис. 1) соответственно. Результат такого вычитания представлен на рис. 2 (значения $\delta n_{a,c}^{\text{ph}}$ приведены к нулю при 275 К). При 50 К фотоиндуцированный вклад в температурные изменения показателя преломления составляет $\delta n_a^{\text{ph}} \approx -8 \cdot 10^{-4}$ и $\delta n_c^{\text{ph}} \approx -3 \cdot 10^{-4}$. Сохранение фоторефрактивного эффекта в парафазе после его возникновения при освещении образца в сегнетофазе наблюдается вплоть до температуры $T \approx 150$ К, близкой к температуре структурного фазового перехода T_a . Наша методика позволила выделить только температурозависимую часть фотоиндуцированного вклада, поэтому нельзя исключить наличие остаточной фоторефракции и при $T > 150$ К, если ее температурные изменения малы, а время сохранения превышает время измерения в этой области температур (1.5–2 часа).

На основе выражений для квадратичного электрооптического эффекта [6] можно оценить величину фотоиндуцированной поляризации $P_{\text{ind}} = \langle P_{\text{ind}}^2 \rangle^{1/2}$, сохраняющейся

выше T_c в парафазе,

$$\begin{aligned} \delta n_a^{\text{ph}} &\approx -(n^3/4)(g_{11} + g_{12} + g_{44})\langle P_{\text{ind}}^2 \rangle \\ &\approx -0.92 \text{ м}^4/\text{С}^2 \langle P_{\text{ind}}^2 \rangle, \end{aligned}$$

$$\delta n_c^{\text{ph}} \approx -(n^3/2)(g_{12})\langle P_{\text{ind}}^2 \rangle \approx -0.27 \text{ м}^4/\text{С}^2 \langle P_{\text{ind}}^2 \rangle, \quad (1)$$

где в качестве коэффициентов g_{ij} были использованы значения коэффициентов титаната стронция [9] ($g_{11} = 0.15 \text{ м}^4/\text{С}^2$, $g_{12} = 0.04 \text{ м}^4/\text{С}^2$, $g_{44} = 0.08 \text{ м}^4/\text{С}^2$) и значения показателя преломления STO ($n_i \approx n \approx 2.41$), а $\langle P_{\text{ind}}^2 \rangle$ — среднее значение квадрата фотоиндуцированной поляризации. Также предполагалось, что направление P_{ind} соответствует направлению спонтанной поляризации в сегнетофазе вдоль оси a . Из обеих величин фотоиндуцированного вклада в температурные изменения главных значений показателя преломления $\delta n_{a,c}^{\text{ph}}$ на основании (1) получаем $P_{\text{ind}} \approx 3 \cdot 10^{-2} \text{ С}/\text{м}^2$ при $T \approx 50$ К. P_{ind} близка по величине к спонтанной поляризации $P_s = \langle P_s^2 \rangle^{1/2} \approx 4.5 \cdot 10^{-2} \text{ С}/\text{м}^2$ при $T \approx 0$ К, найденной нами в [6] из спонтанного полярного вклада в рефракцию света в этом же образце.

Из результатов экспериментов по люминесценции и фототоку [2,3] следует, что при фотовозбуждении светом 1.96 eV происходит перезарядка ионов хрома, что в

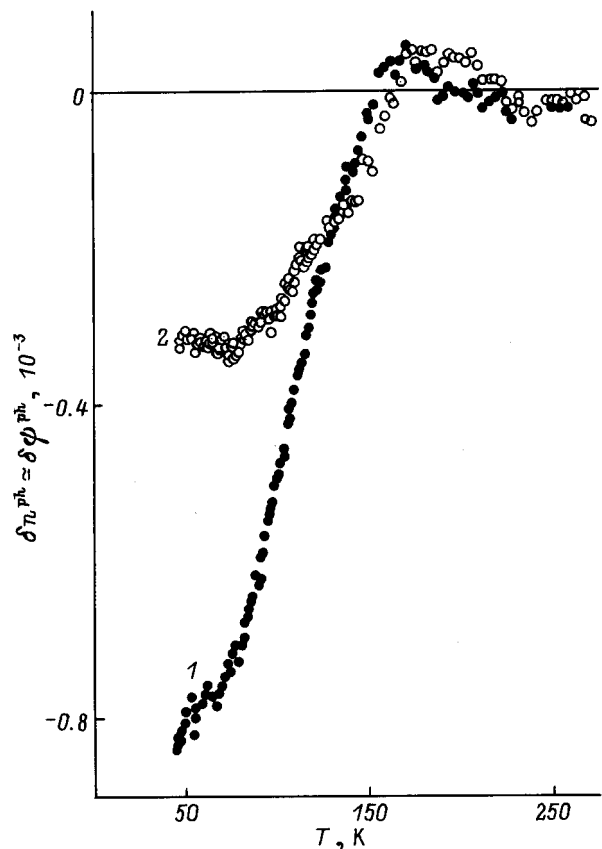


Рис. 2. Спонтанный фотоиндуцированный вклад в температурные изменения рефракции света для $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ с $x = 0.014$. 1 — $\delta n_a^{\text{ph}}(T)$, 2 — $\delta n_c^{\text{ph}}(T)$.

принципе может приводить к возникновению пространственного заряда во внутреннем поле в сегнетофазе. Но процесс перезарядки достаточно быстрый, и вряд ли он ответствен за продолжительное сохранение фоторефракции в парафазе. При этой же энергии фотонов, как отмечалось в [2,3], наблюдается фотовозбуждение электронов и дырок в соответствующую зону. В сегнетофазе носители могут разделяться внутренним полем и, локализуясь на ловушках, обеспечивать фотоиндуцированный пространственный заряд, вызывающий фоторефракцию. Последний механизм кажется более вероятным, если учесть роль ловушек для других эффектов памяти в фотоиндуцированных явлениях в SCT и STO [2,3]. Однако окончательное решение вопроса о механизмах спонтанной фоторефракции в $Sr_{1-x}Ca_xTiO_3$ требует дальнейших целенаправленных экспериментов.

Авторы выражают благодарность Г. Беднорцу за предоставление монокристаллов $Sr_{1-x}Ca_xTiO_3$ ($x = 0.014$).

Данная работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант 96-02-17972).

Список литературы

- [1] J.G. Bednorz, K.A. Müller. *Phys. Rev. Lett.* **52**, 25, 2289 (1984).
- [2] S.A. Basun, U. Bianchi, V.E. Bursian, A.A. Kaplyanskiy, W. Kleemann, P.A. Markovin, L.S. Sochava, V.S. Vikhnin. *Ferroelectrics* **183**, 255 (1996).
- [3] С.А. Басун, В.Э. Бурсиан, В.С. Вихнин, А.А. Каплянский, П.А. Марковин, Л.С. Сочава, У. Бьанки, В. Клееманн. *Изв. РАН. Сер. физ.* **60**, 10, 20 (1996).
- [4] А.П. Леванюк, В.В. Осипов. *Изв. АН СССР. Сер. физ.* **41**, 4, 752 (1977).
- [5] П.А. Марковин, Р.В. Писарев. *ЖЭТФ* **77**, 6, 2462 (1979).
- [6] М.Е. Гужва, В. Клееманн, В.В. Леманов, П.А. Марковин. *ФТТ* **39**, 4, 133 (1997).
- [7] K.A. Müller, W. Berlinger, M. Capizzi, H. Gränicher. *Solid State. Commun.* **8**, 7, 549 (1970).
- [8] W. Kleemann, F.J. Schäfer. *Jap. J. Appl. Phys.* **24**, *Suppl. 24-2*, 260 (1985).
- [9] Y. Fujii, T. Sakudo. *J. Appl. Phys.* **41**, 10, 4118 (1970).