

## Объемные пропускающие голограммы в кристаллах ниобата лития с поверхностным легированием медью для реализации фотовольтаических пинцетов

© Р.И. Анисимов, А.С. Темерева, А.А. Колмаков, С.М. Шандаров

Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники,  
634050 Томск, Россия

e-mail: roman.anisimov.00@mail.ru

Поступила в редакцию 07.08.2023 г.

В окончательной редакции 07.08.2023 г.

Принята к публикации 28.09.2023 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований, теоретического анализа и численного моделирования особенностей формирования объемных пропускающих голограмм картиной интерференции лазерных пучков с высоким контрастом в диффузионно-легированной пластине X-среза  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  с различающимися распределениями ионов меди  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$ , каждое из которых описывается суммой постоянной составляющей и двух функций Гаусса. Получены аналитические выражения для описания временной эволюции амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной голограммы, принимающие во внимание неоднородности распределения ионов меди и показателя поглощения записывающих пучков по толщине образца. Из сопоставления экспериментальных результатов с полученными теоретическими соотношениями оценены некоторые материальные параметры исследуемой структуры  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ . Проведен сравнительный анализ пространственного распределения для амплитуды первой гармоники поля фоторефрактивной голограммы в пластинах  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  двух типов. Получено, что для реализации фотовольтаических пинцетов необходимо использовать диффузионно-легированные структуры  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  X-среза с близкими распределениями донорных ( $\text{Cu}^+$ ) и ловушечных ( $\text{Cu}^{2+}$ ) центров с максимумами, локализованными вблизи границы, предназначенной для захвата микро- и наночастиц.

**Ключевые слова:** фоторефрактивная голограмма, фотовольтаические пинцеты, ниобат лития, дифракционная эффективность, угловая селективность.

DOI: 10.61011/OS.2023.10.56888.5480-23

### Введение

Один из подходов к реализации оптически управляемых манипуляторов микро- и нанообъектами заключается в использовании сильных эванесцентных электрических полей, возникающих над поверхностью кристаллов ниобата лития при их неоднородном освещении [1–6]. В качестве подложек для оптических пинцетов такого типа используются кристаллы ниобата лития, легированные железом [1–5] или медью [6], где ионы примеси обеспечивают высокий фотовольтаический отклик. Преимущества фотовольтаических пинцетов заключаются в возможности неоднократного использования монокристаллических подложек и в сведении к минимуму перегрева захватываемых объектов за счет применения маломощных источников излучения [5].

В работе [6] было продемонстрировано агрегирование диэлектрических наночастиц эванесцентными электрическими полями фоторефрактивных решеток на поверхности образца  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ , полученного диффузионным легированием пластины X-среза конгруэнтного ниобата лития из металлической пленки меди. Диффузия меди в образцы ниобата лития может проводиться при температурах 600°C [7], 800°C [8] и 1000°C [6,9–11],

из металлических пленок Cu [6,9–11] и порошкового оксида CuO [7,8].

Для реализации фотовольтаических пинцетов на основе диффузионно-легированных пластин  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  важными характеристиками являются распределения по глубине образца концентраций примесных центров  $C_{\text{Cu}^+}$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}$ , находящихся в зарядовых состояниях  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$  соответственно [12]. Следует отметить, что приведенные в работах [6–11] сведения о характере данных распределений являются противоречивыми. Из представленных в [9] результатов следует, что в образце с толщиной 1 mm концентрация  $\text{Cu}^+$  с увеличением расстояния от X-поверхности, на которую напылялась металлическая пленка меди, уменьшается всего на 20%. Однако в [6] распределение показателя поглощения  $k_{523}(x)$  на длине волны 532 nm получено в виде функции Гаусса с полушириной  $\Delta x = 316 \mu\text{m}$  и с максимумом на X-границе, через которую осуществлялась диффузия из металлической пленки Cu. Для данного образца  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  при анализе формирования динамических фоторефрактивных решеток, проведенном в [12], предполагалось, что распределения концентрации ионов  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$  в поверхностном слое также являются гауссовыми и характеризуются такой же полушириной

$\Delta x$ , как и  $k_{523}(x)$ . Авторами [8] получено, что при диффузии из порошкового оксида  $\text{CuO}$  в образцах в виде прямоугольного параллелепипеда с гранями, параллельными кристаллофизическим осям  $X, Y$  и  $Z$ , зависимости концентрации ионов  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$  от глубины  $L$  различаются, имеют немонотонное поведение и характеризуются максимумами, расположенными при  $L \approx 400\text{--}500\ \mu\text{m}$  для  $\text{Cu}^+$  и  $L \approx 200\text{--}300\ \mu\text{m}$  для  $\text{Cu}^{2+}$ . Они отмечают отличие полученных ими распределений  $\text{Cu}^+(L)$  и  $\text{Cu}^{2+}(L)$  от предсказываемых простой моделью термической диффузии и полагают необходимым проведение дополнительных исследований ее механизма в случае  $\text{Cu}$  и ниобата лития.

Подробному экспериментальному исследованию распределений по координате  $x$  для концентрации ионов  $C_{\text{Cu}^+}(x)$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}(x)$  в диффузионно-легированной пластине  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$   $X$ -среза посвящена работа [11]. Исходная пластина конгруэнтного ниобата лития имела толщину  $d = 1.33\ \text{mm}$ ; диффузия проводилась из металлической пленки с толщиной  $600\ \text{nm}$ , нанесенной на грань  $x = 0$  пластины методом магнетронного распыления в течение  $9\ \text{h}$  при температуре  $T = 1000^\circ\text{C}$ . После проведения диффузии из пластины  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  резкой и оптической полировкой была получена клинообразная область с углом наклона  $\gamma = 36^\circ$  к плоскости  $x = d$ . Измерение зависимостей показателей поглощения на длинах волн  $532$  и  $808\ \text{nm}$ , пропорциональных концентрациям  $C_{\text{Cu}^+}(x)$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}(x)$  соответственно, от толщины клинообразной области  $h_w$  позволило авторам [11] аппроксимировать их суммой двух функций Гаусса. Можно предположить, что в процессе диффузии оба типа ионов будут иметь ненулевую концентрацию по всей толщине образца  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ . Поэтому для описания распределений  $C_{\text{Cu}^+}(x)$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}(x)$  в них следует учесть и постоянные составляющие с небольшими значениями  $C_{\text{Cu}^+}^0$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}^0$ , сравнимыми с точностью экспериментальных измерений по показателям поглощения. Используя данные [11], в результате получаем

$$C_{\text{Cu}^+}(x) = C_{\text{Cu}^+}^{m1} \exp\left[-\frac{(x-x_1^+)^2}{(\Delta x_1^+)^2}\right] + C_{\text{Cu}^+}^{m2} \exp\left[-\frac{(x-x_2^+)^2}{(\Delta x_2^+)^2}\right] + C_{\text{Cu}^+}^0, \quad (1)$$

$$C_{\text{Cu}^{2+}}(x) = C_{\text{Cu}^{2+}}^{m1} \exp\left[-\frac{(x-x_1^{2+})^2}{(\Delta x_1^{2+})^2}\right] + C_{\text{Cu}^{2+}}^{m2} \exp\left[-\frac{(x-x_2^{2+})^2}{(\Delta x_2^{2+})^2}\right] + C_{\text{Cu}^{2+}}^0 \quad (2)$$

с максимальными значениями  $C_{\text{Cu}^+}^{m1} = 4.20 \cdot 10^{25}\ \text{m}^{-3}$ ,  $C_{\text{Cu}^+}^{m2} = 8.02 \cdot 10^{24}\ \text{m}^{-3}$ ,  $C_{\text{Cu}^{2+}}^{m1} = 2.26 \cdot 10^{26}\ \text{m}^{-3}$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}^{m2} = 1.64 \cdot 10^{26}\ \text{m}^{-3}$  и с пространственными параметрами  $x_1^+ = 95\ \mu\text{m}$ ,  $x_2^+ = 1215\ \mu\text{m}$ ,  $\Delta x_1^+ = 310\ \mu\text{m}$ ,  $\Delta x_2^+ = 70\ \mu\text{m}$ ,  $x_1^{2+} = 225\ \mu\text{m}$ ,  $x_2^{2+} = 1245\ \mu\text{m}$ ,  $\Delta x_1^{2+} = 130\ \mu\text{m}$  и  $\Delta x_2^{2+} = 37\ \mu\text{m}$ . Проведенные

исследования, описанные ниже, позволили оценить постоянные составляющие концентраций как  $C_{\text{Cu}^+}^0 = 0.9 \cdot 10^{24}\ \text{m}^{-3}$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}^0 = 2.0 \cdot 10^{25}\ \text{m}^{-3}$ . При анализе формирования объемных пропускающих голограмм в таких образцах  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  необходимо учитывать сложный характер распределения ионов меди, обеспечивающих процессы фотовозбуждения с донорных центров  $\text{Cu}^+$  электронов в зону проводимости с их последующей рекомбинации на ловушки  $\text{Cu}^{2+}$ .

Целью настоящей работы является исследование особенностей формирования фоторефрактивных решеток картиной интерференции записывающих лазерных пучков с высоким контрастом в пластине  $X$ -среза  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  с различающимися распределениями ионов  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$ , каждое из которых описывается суммой постоянной составляющей и двух функций Гаусса.

## Теоретическая модель и приближения

Рассмотрим формирование поля пространственного заряда  $\mathbf{E}(x, z, t)$  фоторефрактивной решетки в приближении заданной интенсивности света  $J(x, z)$  в интерференционной картине, созданной двумя записывающими световыми волнами, распространяющимися симметрично относительно оси  $X$  в разомкнутом вдоль оси  $Z$  кристалле  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ . Будем полагать, что кванты записывающего излучения с энергией  $\hbar\omega_w$  приводят к возбуждению электронов с донорных центров  $\text{Cu}^+$  в зону проводимости. Этот процесс будет сопровождаться оптическим поглощением с показателем, определяемым следующим выражением [13]:

$$\alpha_w(x) = \hbar\omega_w S_w [N_D(x) - N_A(x)] = \hbar\omega_w S_w C_{\text{Cu}^+}(x), \quad (3)$$

где  $S_w$  — сечение фотоионизации для центров данного типа. Как и в [12], здесь учтено, что общая концентрация дефектных центров  $N_D(x)$ , между которыми происходит фотоиндуцированное перераспределение зарядов при неоднородном освещении, и концентрация компенсирующих акцепторов  $N_A(x)$ , в темновых условиях равная концентрации ионизированных донорных центров, играющих роль ловушек электронов, определяются выражениями

$$N_D(x) = C_{\text{Cu}^+}(x) + C_{\text{Cu}^{2+}}(x) \quad (4)$$

и

$$N_A(x) = C_{\text{Cu}^{2+}}(x). \quad (5)$$

С учетом зависимости показателя поглощения от координаты  $x$ , определяемой формулами (3) и (1), распределение интенсивности света для картины интерференции в пластине  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  может быть получено

в следующем виде:

$$J(x, z) = J_0 \exp \left\{ -\hbar\omega_w S_w \left[ \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left( C_{Cu^+}^{m1} \Delta x_1^+ \left\{ \operatorname{erf} \left( \frac{x_1^+}{\Delta x_1^+} \right) + \operatorname{erf} \left( \frac{x - x_1^+}{\Delta x_1^+} \right) \right\} + C_{Cu^+}^{m2} \Delta x_2^+ \left\{ \operatorname{erf} \left( \frac{x_2^+}{\Delta x_2^+} \right) + \operatorname{erf} \left( \frac{x - x_2^+}{\Delta x_2^+} \right) \right\} \right] + C_{Cu^+}^0 \right\} \left[ 1 + m \cos \left( \frac{2\pi}{\Lambda} z \right) \right], \quad (6)$$

где  $\operatorname{erf}(x/\Delta x)$  — интеграл вероятности [14]. Следуя работе [12] и известной одноуровневой модели зонного переноса [13], пренебрежем диффузионным механизмом перераспределения пространственного заряда и эффектом насыщения ловушек, а также воспользуемся приближениями медленных изменений всех рассматриваемых функций вдоль координаты  $x$  ( $\partial J/\partial x \ll \partial J/\partial z$ ,  $|\partial E/\partial x| \ll |\partial E/\partial z|$ , и т.д.), низкой интенсивности света  $J(x, z)$  и адиабатического следования концентрации электронов в зоне проводимости ее временным изменениям. В результате уравнение, описывающее временную эволюцию преобладающей компоненты электрической напряженности поля пространственного заряда  $E_z(x, z, t) = E(x, z, t)$ , принимает следующий вид [12]:

$$\frac{\partial E}{\partial t} + \frac{e\mu S_w}{\varepsilon_3 \gamma N_A} (N_D - N_A) J E + \frac{G S_w \hbar \omega_w}{\varepsilon_3} (N_D - N_A) J = 0, \quad (7)$$

где  $e$  — элементарный электрический заряд;  $\varepsilon_3$  — статическая диэлектрическая проницаемость кристалла для поля вдоль полярной оси  $Z$ ;  $\mu$  — подвижность электронов вдоль данной оси;  $G$  — константа Гласса, зависящая от поляризации света, формирующего фоторефрактивную решетку [15]; и  $\gamma$  — коэффициент двухчастичной рекомбинации.

Для начального условия  $E(x, z, 0) = 0$ , соответствующего включению записывающих световых пучков при  $t = 0$ , решение (7) было получено в [12] в следующем виде:

$$E(x, z, t) = -\frac{G \hbar \omega_w \gamma N_A(x)}{e \mu} \left\{ 1 - \exp \left[ -\frac{t}{\tau(x)} \right] \times \exp \left[ -\frac{m t}{\tau(x)} \cos \left( \frac{2\pi}{\Lambda} z \right) \right] \right\}, \quad (8)$$

где  $\Lambda$  — пространственный период решетки. Однако время релаксации  $\tau(x)$  в этом выражении будет определяться сложными зависимостями (1) и (2) от координаты  $x$  для концентраций ионов  $Cu^+$  и  $Cu^{2+}$ , а также распределением средней интенсивности света в

кристалле, которое следует из (6):

$$\frac{1}{\tau(x)} = J_0 \frac{e \mu S_w}{\varepsilon_3 \gamma} \frac{C_{Cu^+}^{m1} \exp[-(x - x_1^+)^2/(\Delta x_1^+)^2] + C_{Cu^+}^{m2} \exp[-(x - x_2^+)^2/(\Delta x_2^+)^2] + C_{Cu^+}^0}{C_{Cu^{2+}}^{m1} \exp[-(x - x_1^{2+})^2/(\Delta x_1^{2+})^2] + C_{Cu^{2+}}^{m2} \exp[-(x - x_2^{2+})^2/(\Delta x_2^{2+})^2] + C_{Cu^{2+}}^0} \times \exp \left\{ -\hbar\omega_w S_w \left[ \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left( C_{Cu^+}^{m1} \Delta x_1^+ \left\{ \operatorname{erf} \left( \frac{x_1^+}{\Delta x_1^+} \right) + \operatorname{erf} \left( \frac{x - x_1^+}{\Delta x_1^+} \right) \right\} + C_{Cu^+}^{m2} \Delta x_2^+ \left\{ \operatorname{erf} \left( \frac{x_2^+}{\Delta x_2^+} \right) + \operatorname{erf} \left( \frac{x - x_2^+}{\Delta x_2^+} \right) \right\} \right] + C_{Cu^+}^0 \right\}. \quad (9)$$

Как отмечалось в [12], формирующееся в пластине  $LiNbO_3 : Cu$  поле пространственного заряда фоторефрактивной решетки представляет собой суперпозицию пространственных гармоник вида

$$E_{sc}^{(n)}(x, z, t) = E_n(x, t) \cos(2\pi n/\Lambda) \quad (10)$$

с номерами  $n = 0, 1, 2, \dots$  и амплитудами  $E_n(x, t)$ . Эти амплитуды могут быть найдены с использованием разложения последнего экспоненциального множителя в (8) в ряд по модифицированным функциям Бесселя  $n$ -го порядка,  $I_n(mt/\tau(x))$ . Для амплитуды первой гармоники  $E_n(x, t)$  при  $n = 1$  из (10), которая определяет эффективность дифракции Брэгга на фоторефрактивной решетке, из соотношений (8), (5) и (2) может быть найдено следующее аналитическое выражение:

$$E_1(x, t) = -\frac{2G \hbar \omega_w \gamma}{e \mu} \left\{ C_{Cu^{2+}}^{m1} \exp \left[ -\frac{(x - x_1^{2+})^2}{(\Delta x_1^{2+})^2} \right] + C_{Cu^{2+}}^{m2} \times \exp \left[ -\frac{(x - x_2^{2+})^2}{(\Delta x_2^{2+})^2} \right] + C_{Cu^+}^0 \right\} I_1 \left( \frac{m t}{\tau(x)} \right) \exp \left( -\frac{t}{\tau(x)} \right). \quad (11)$$

Как следует из (11), динамика формирования фоторефрактивной голограммы, для которой эффективность брэгговской дифракции зондирующего пучка определяется именно амплитудой поля первой пространственной гармоники, в рассматриваемом образце  $LiNbO_3 : Cu$  имеет сложный характер, зависящий от распределений для концентраций ионов меди в обоих зарядовых состояниях,  $C_{Cu^+}(x)$  и  $C_{Cu^{2+}}(x)$ . Однако нарастание этой амплитуды во времени на начальном участке, при  $t \ll \tau(x)$ , происходит, как следует из (11) и (9), по линейному закону. При этом неоднородное пространственное распределение по координате  $x$  на данном участке сохраняется и определяется исключительно распределением

фотovoltaически активных донорных центров  $C_{Cu^+}(x)$ :

$$E_1^{in}(x, t) = -mJ_0 \frac{G\hbar\omega_w S_w}{\varepsilon_3} t \left\{ C_{Cu^+}^{m1} \exp\left[-\frac{(x-x_1^+)^2}{(\Delta x_1^+)^2}\right] + C_{Cu^+}^{m2} \exp\left[-\frac{(x-x_2^+)^2}{(\Delta x_2^+)^2}\right] + C_{Cu^+}^0 \right\} \exp\left\{-\hbar\omega_w S_w \times \left[\frac{\sqrt{\pi}}{2} \left( C_{Cu^+}^{m1} \Delta x_1^+ \left\{ \operatorname{erf}\left(\frac{x_1^+}{\Delta x_1^+}\right) + \operatorname{erf}\left(\frac{x-x_1^+}{\Delta x_1^+}\right) \right\} + C_{Cu^+}^{m2} \Delta x_2^+ \left\{ \operatorname{erf}\left(\frac{x_2^+}{\Delta x_2^+}\right) + \operatorname{erf}\left(\frac{x-x_2^+}{\Delta x_2^+}\right) \right\} \right) + C_{Cu^+}^0 \right]\right\}. \quad (12)$$

Для контроля дифракционной эффективности рассматриваемой фоторефрактивной голограммы целесообразно использование лазерного излучения с длиной волны  $\lambda_r > \lambda_w$ , при которой образец  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  имеет низкую фоторефрактивную чувствительность и пренебрежимо малое значение среднего показателя поглощения [10,12]. В этом случае эффективность дифракции Брэгга в первый порядок будет максимальна при необыкновенном зондирующем пучке с величиной  $\eta(t)$ , определяемой амплитудой возмущения необыкновенного показателя преломления, создаваемого записывающими пучками в пластине  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ :

$$\Delta n_e(x, t) = -\frac{n_e^3 r_{33}}{2} E_1(x, t), \quad (13)$$

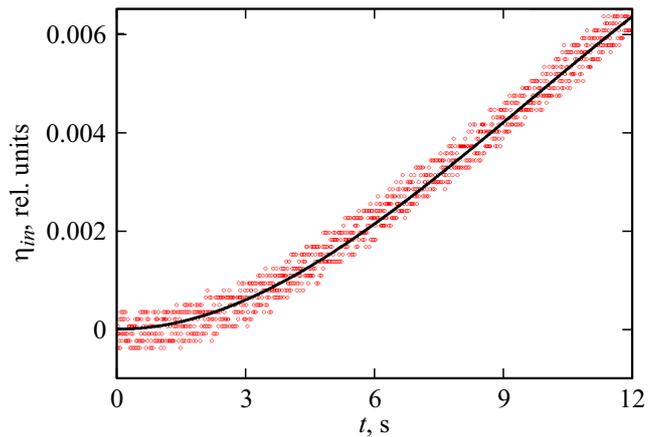
где  $n_e$  — необыкновенный показатель преломления невозмущенного кристалла и  $r_{33}$  — его электрооптическая постоянная. Для малых значений  $\eta(t)$ , не превосходящих нескольких процентов, при теоретическом анализе изменением амплитуды считывающей волны  $A_r$  за счет преобразования в дифрагированный пучок можно пренебречь. Пренебрегая также ее оптическим поглощением, учитывая малость угла Брэгга  $\theta_B$  и угла падения зондирующего пучка  $\theta_i$  и используя известный подход [16,17], уравнение для пространственной эволюции амплитуды дифрагированной световой волны  $A_d(x, t)$  с учетом (13) представим в следующем виде:

$$\frac{dA_d}{dx} = -i \frac{\pi}{2\lambda_r} n_e^3 r_{33} E_1(x, t) A_r \exp(i\Delta k x) \quad (14)$$

с параметром волновой расстройки, определяемым отклонением в кристалле угла падения зондирующего пучка  $\theta_i$  от  $\theta_B$ :

$$\Delta k \simeq \frac{2\pi}{\Lambda} (\sin \theta_i - \sin \theta_B). \quad (15)$$

Полученные в рамках рассматриваемой модели соотношения позволяют описать формирование поля пространственного заряда и временную динамику дифракционной эффективности фоторефрактивных голограмм,



**Рис. 1.** Временная зависимость дифракционной эффективности на начальном участке формирования динамической фоторефрактивной решетки в исследуемом образце  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ . Точки — экспериментальные данные; сплошная линия — аппроксимация по формуле (16) при  $b = 7.63 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-2}$  и  $c = -2.66 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-3}$ .

формируемых в пластинах X-среза  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  с различными распределениями ионов  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$ , каждое из которых описывается суммой постоянной составляющей и двух функций Гаусса, картиной интерференции записывающих лазерных пучков с высоким контрастом.

## Эксперимент

Для формирования динамических фоторефрактивных голограмм с пространственным периодом  $\Lambda = 12 \mu\text{m}$  использовалась картина интерференции с контрастом  $m \approx 0.98$  и вектором решетки, параллельным полярной оси Z, двух записывающих лазерных пучков с длиной волны  $\lambda_w = 532 \text{ nm}$  и мощностями  $P_1 \approx 0.98 \text{ mW}$ ,  $P_2 \approx 1.45 \text{ mW}$ . Они соответствовали обычным волнам, имели апертуру  $D_w = 1.1 \text{ mm}$  и обеспечивали среднюю интенсивность интерференционной картины  $J_0 \approx 472 \text{ W/m}^2$  на входной грани  $x = 0$  (см. формулу (6)) описанного выше образца  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  с распределениями концентрации ионов меди, аппроксимируемые соотношениями (1) и (2). Контроль дифракционной эффективности формируемой объемной решетки, как и в [12], осуществлялся зондирующим пучком полупроводникового лазера с  $\lambda_r = 650 \text{ nm}$  и мощностью  $4.3 \text{ mW}$ , распространяющимся в виде необыкновенной волны под соответствующим углом Брэгга к оси X образца. Наблюдаемая зависимость роста дифракционной эффективности  $\eta_{in}(t)$  на начальном участке записи фоторефрактивной решетки, измеренная с использованием фотодиода ФД-24К и цифрового осциллографа Tektronix TDS2022C, представленная точками на рис. 1, удовлетворительно аппроксимировалась функцией

$$\eta_{in}(t) = bt^2 + ct^3, \quad (16)$$



дующем виде:

$$\eta_n(\theta_{ia}, t) = \frac{\left| \int_0^d E_1(x, t) \exp \left[ i \frac{2\pi}{\Lambda n_e} \left( \sin \theta_{ia} - \frac{\lambda_r}{2\Lambda} \right) \right] dx \right|^2}{\left| \int_0^d E_1(x, t) dx \right|^2}, \tag{19}$$

где амплитуда первой пространственной гармоники  $E_1(x, t)$  определяется соотношениями (11) и (9). Результаты численного моделирования данной угловой зависимости для значений используемых подгоночных параметров  $C_{Cu^+}^0 = 9 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$ ,  $C_{Cu^{2+}}^0 = 2 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$  и  $\gamma/\mu = 5.7 \cdot 10^{-12} \text{ m} \cdot \text{V}$  показаны на рис. 3 сплошной кривой.

Как следует из рис. 3, используемая модель формирования поля пространственного заряда фоторефрактивной голограммы картиной интерференции с высоким контрастом  $m \approx 1$  в исследуемом кристалле X-среза  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  с диффузионным легированием, предполагающая наличие в нем различающихся распределений ионов  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$ , каждое из которых представляется суммой постоянной составляющей и двух функций Гаусса, удовлетворительно описывает кривую угловой селективности для ее трех главных лепестков. Значительные различия между экспериментальными и расчетными данными для отстройки от угла Брэгга  $|\Delta\theta| > 2.2 \text{ deg}$  могут быть связаны с принятыми приближениями и с погрешностями в определении параметров для распределений  $C_{Cu^+}(x)$  и  $C_{Cu^{2+}}(x)$ .

### Численное моделирование пространственного распределения и динамики поля пространственного заряда

Для расчета распределения амплитуды поля пространственного заряда  $E_1(x, t)$  по глубине кристалла в различные моменты времени после начала записи фоторефрактивной голограммы могут быть использованы соотношения (11) и (9). Как из них следует, амплитуда  $E_1(x, t)$  сложным образом зависит от распределений по кристаллу концентраций ионов  $C_{Cu^+}(x)$  и  $C_{Cu^{2+}}(x)$ . Ограничимся ниже анализом двух структур  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ , первая из которых рассмотрена выше, а вторая описана в работе [12], с распределениями концентраций ионов меди, иллюстрируемых рис. 4, *a* и 4, *b* соответственно.

Следует отметить, что локализация главных максимумов для распределений донорных и ловушечных центров, которыми являются ионы в зарядовых состояниях  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$  соответственно, в первом образце  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  различна. При этом концентрации ловушек

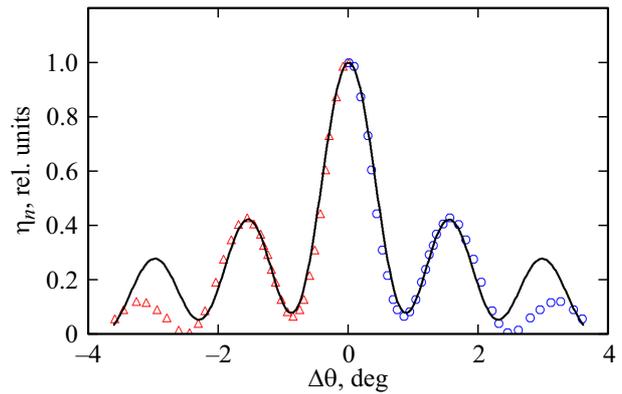


Рис. 3. Зависимость нормированной дифракционной эффективности от угла отстройки  $\Delta\theta$  между углом падения  $\theta_{ia}$  и углом Брэгга  $\theta_{Ba}$  в воздухе,  $\Delta\theta = \theta_{ia} - \theta_{Ba}$ . Точки соответствуют данным, представленным на рис. 2. Сплошная кривая — расчетная зависимость по соотношениям (19), (11) и (9).

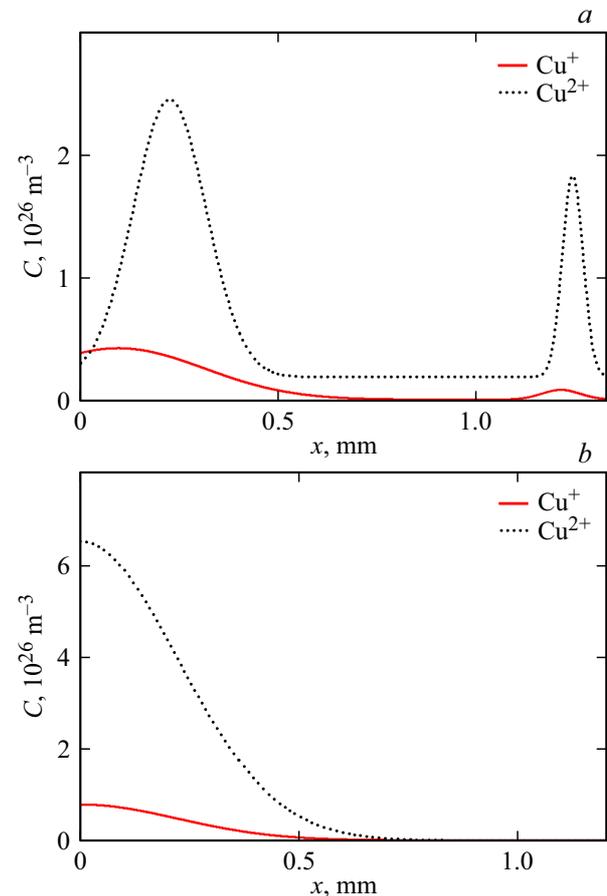
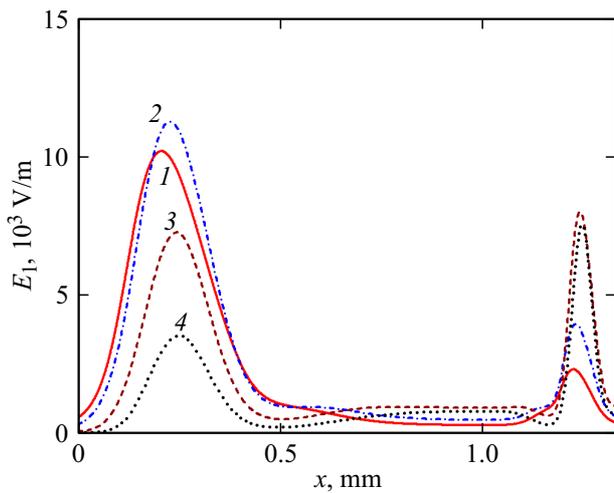


Рис. 4. Распределения концентраций ионов в зарядовых состояниях  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$  по глубине диффузионно-легированных образцов  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ , описанных в настоящей работе (*a*) и в [12] (*b*).

вблизи граней кристалла  $x = 0$  и  $x = d = 1.33 \text{ mm}$  имеют существенно меньшее значение, чем на удалении от них, при  $x = 225 \mu\text{m}$  и  $x = 1245 \mu\text{m}$ .



**Рис. 5.** Распределение амплитуды поля первой пространственной гармоники фоторефрактивной голограммы с пространственным периодом  $12\ \mu\text{m}$  по глубине в описанном в настоящей работе диффузионно-легированном образце  $X$ -среза  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  с представленными на рис. 4, *a* зависимостями  $C_{\text{Cu}^+}(x)$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}(x)$ , при записи интерференционной картины с интенсивностью  $J_0 \approx 472\ \text{W/m}^2$  и контрастом  $m \approx 0.98$  в различные моменты времени  $t_w = 1$  (1), 2 (2), 8 (3) и 24 с (4).

Результаты расчета  $E_1(x, t_i)$  для данного образца  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  при рассмотренных выше параметрах распределений  $C_{\text{Cu}^+}(x)$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}(x)$  и полученных из эксперимента оценок для  $G_0$  и  $\gamma/\mu$ , с использованием значения сечения фотоионизации  $S_w = 2.0 \cdot 10^{-4}\ \text{m}^2/\text{J}$  [12] и литературных данных по материальным параметрам ниобата лития из [15,18] представлены на рис. 5.

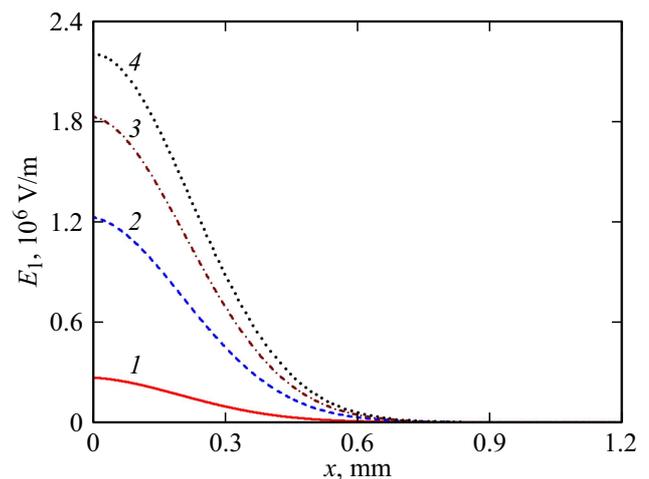
Как видно из рис. 5, динамика формирования первой пространственной гармоники электрического поля голограммы с амплитудой  $E_1(x, t)$  в исследуемой структуре  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  имеет сложный характер. Уже на начальной стадии записи, при  $t_w = 1\ \text{s}$  (кривая 2), координатная зависимость амплитуды поля не соответствует распределению концентрации донорных центров  $C_{\text{Cu}^+}(x)$  по глубине кристалла (рис. 4, *a*). Расчеты показывают, что для использованных параметров модели и условий эксперимента длительность начального участка, когда основной вклад в динамику поля пространственного заряда вносят процессы фотовозбуждения электронов в зону проводимости с донорных центров  $\text{Cu}^+$  и ее можно описать соотношением (12), не превышает  $0.01\ \text{s}$ . Далее основную роль начинает играть ток проводимости, величина которого пропорциональна подвижности электронов  $\mu$ , и их рекомбинация из зоны проводимости на ловушечные центры  $\text{Cu}^{2+}$  со скоростью, определяемой величиной  $(\gamma C_{\text{Cu}^{2+}}(x))^{-1}$ . Используемое при численном моделировании динамики амплитуды поля  $E_1(x, t)$  значение  $\gamma/\mu = 5.7 \cdot 10^{-12}\ \text{m} \cdot \text{V}$ , найденное из подгонки кривой угловой селективности (рис. 3), существенно отличается от литературных данных для объемно-легированных кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ ,  $\gamma/\mu = 7.2 \cdot 10^{-9}\ \text{m} \cdot \text{V}$  (см., на-

пример, [12]). Причины такого отличия для исследованной структуры с диффузионным легированием требуют дальнейшего изучения.

Характерно, что амплитуда первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной голограммы на границе  $x = 0$  данной структуры  $E_1(0, t)$  убывает со временем записи. Поэтому она не подходит для реализации на ее основе фотовольтаических пинцетов. Из рис. 4, *a* и рис. 5 следует, что максимумы этой амплитуды приблизительно соответствуют максимумам в распределении концентрации ловушек  $C_{\text{Cu}^{2+}}(x)$ .

Результаты расчета  $E_1(x, t_w)$  для структуры  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ , описанной в работе [12], с использованием приведенных в ней значений для материальных параметров  $G_e \approx 4.6\ \text{pm/V}$ ,  $\gamma = 5.3 \cdot 10^{-13}\ \text{m}^3/\text{s}$ ,  $\mu = 7.4 \cdot 10^{-5}\ \text{m}^2/\text{V} \cdot \text{s}$  и для гауссовых распределений концентрации ионов меди  $C_{\text{Cu}^+}^m = 7.8 \cdot 10^{24}\ \text{m}^{-3}$ ,  $C_{\text{Cu}^{2+}}^m = 6.5 \cdot 10^{25}\ \text{m}^{-3}$  и  $\Delta x^+ = \Delta x^{2+} = 316\ \mu\text{m}$ , а также для экспериментальных характеристик записывающей интерференционной картины  $m = 1$  и  $J_0 = 2600\ \text{W/m}^2$  приведены на рис. 6.

В таком образце при совпадающем характере распределений донорных и ловушечных центров наблюдается монотонный рост во времени амплитуды первой пространственной гармоники  $E_1(x, t_w)$  по всей его глубине. При этом ее максимальное значение достигается на границе структуры  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$   $x = 0$ , обеспечивая над ней, при  $x < 0$ , значительные эванесцентные поля с амплитудами более  $1\ \text{MV/m}$  при временах записи  $t_w > 60\ \text{s}$ . Таким образом, для реализации фотовольтаических пинцетов оптимальным является использова-



**Рис. 6.** Распределение амплитуды поля первой пространственной гармоники фоторефрактивной голограммы с пространственным периодом  $2.5\ \mu\text{m}$  по глубине для описанного в [12] диффузионно-легированного образца  $X$ -среза  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  с представленными на рис. 4, *b* зависимостями  $C_{\text{Cu}^+}(x)$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}(x)$  при записи интерференционной картины с интенсивностью  $J_0 = 2600\ \text{W/m}^2$  и контрастом  $m = 1$  в течение различных интервалов времени:  $t_w = 10$  (1), 60 (2), 120 (3) и 270 с (4).

ние диффузионно-легированных образцов  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  X-среза с близкими распределениями донорных ( $\text{Cu}^+$ ) и ловушечных ( $\text{Cu}^{2+}$ ) центров с максимумами, локализованными вблизи границы, предназначенной для захвата микро- и нанообъектов за счет диэлектрфоретических сил. Для создания таких структур необходима корректная модель процессов диффузии меди в кристаллы ниобата лития, которая в настоящее время отсутствует.

## Заключение

Таким образом, в работе рассмотрены особенности формирования объемных пропускающих голограмм в пластинах X-среза ниобата лития с диффузионным легированием медью с целью реализации фотовольтаических пинцетов. Экспериментальные исследования и численное моделирование проводились для образца  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  X-среза, описанного в [9], где распределение концентрации ионов меди в зарядовых состояниях  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$  было предложено аппроксимировать различающимися суммами двух функций Гаусса. В предположении, что в процессе диффузии оба типа ионов могут иметь ненулевую концентрацию по всей толщине пластины  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  при численном моделировании в этих распределениях учитывались и постоянные составляющие концентраций с небольшими значениями  $C_{\text{Cu}^+}^0$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}^0$ . Использование развитого в [12] подхода позволило получить (в приближениях заданной интенсивности света в интерференционной картине с произвольным контрастом, отсутствия насыщения ловушек и диффузионного тока, а также медленных изменений всех функций вдоль координаты  $x$ ) аналитические выражения для описания временной эволюции амплитуды первой пространственной гармоники поля  $E_1(x, t)$ , принимающие во внимание неоднородности распределения ионов  $\text{Cu}^+$  и  $\text{Cu}^{2+}$  и показателя поглощения записывающих пучков по толщине образца.

Из сопоставления с полученными теоретическими соотношениями результатов экспериментальных исследований эффективности дифракции Брэгга считывающего пучка для начального участка формирования фоторефрактивной голограммы ( $t_w < 3$  s) и ее угловой селективности (при времени записи  $t_w = 7$  s, для картины интерференции записывающих световых пучков ( $\lambda_w = 532$  nm) с контрастом  $m \approx 0.98$  и средней интенсивностью  $J_0 \approx 470$  W/m<sup>2</sup>) оценены материальные параметры структуры  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ , такие как константа Гласса для обыкновенных волн  $G_0 \approx 8.0$  pm/V, отношение коэффициента двухчастичной рекомбинации к подвижности электронов вдоль полярной оси  $\gamma/\mu = 5.7 \cdot 10^{-12}$  м · V и постоянные составляющие в распределениях концентраций ионов меди  $C_{\text{Cu}^+}^0 = 9 \cdot 10^{23}$  м<sup>-3</sup> и  $C_{\text{Cu}^{2+}}^0 = 2 \cdot 10^{25}$  м<sup>-3</sup>.

С использованием численного моделирования по полученным соотношениям проведен сравнительный анализ пространственного распределения для амплитуды

первой гармоники электрического поля фоторефрактивной голограммы в двух структурах  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ : рассмотренной в настоящей работе и описанной в [12]. Установлено, что амплитуда первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной голограммы для первой структуры достигает максимума, примерно соответствующего максимуму в распределении концентрации ловушек  $C_{\text{Cu}^{2+}}^0(x)$  на расстоянии около  $250$  μm от границы  $x = 0$ , где поле  $E_1(0, t)$  невелико и убывает со временем записи. Поэтому такие структуры не подходят для реализации на их основе фотовольтаических пинцетов. Для второй структуры (с гауссовыми распределениями концентрации донорных и ловушечных центров, с локализацией максимумов  $C_{\text{Cu}^+}^m$  и  $C_{\text{Cu}^{2+}}^m$  соответственно при  $x = 0$ ) наблюдается монотонный рост во времени амплитуды первой пространственной гармоники  $E_1(x, t)$  по всей ее глубине с максимальным значением  $E_1(0, t)$ . При времени записи голограммы  $t_w > 60$  s для этой структуры реализуются эванесцентные поля с амплитудами более 1 MV/m. Это позволяет сделать вывод о необходимости использования для реализации фотовольтаических пинцетов диффузионных структур  $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$  X-среза с близкими распределениями донорных ( $\text{Cu}^+$ ) и ловушечных ( $\text{Cu}^{2+}$ ) центров с максимумами, локализованными вблизи границы, предназначенной для захвата микро- и наночастиц за счет диэлектрфоретических сил.

## Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки и высшего образования Российской Федерации в рамках Госзадания FEWM-2023-0012 на 2023 г.

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] J. Villarroel, H. Burgos, Á. García-Cabañes, M. Carrascosa, A. Blázquez-Castro, F. Agulló-López. Opt. Express, **19** (24), 24320 (2011). DOI: 10.1364/OE.19.024320
- [2] M. Esseling, A. Zaltron, N. Argiolas, G. Nava, J. Imbrock, I. Cristiani, C. Sada, C. Denz. Appl. Phys. B, **113** (2), 191 (2013). DOI: 10.1007/s00340-013-5456-8
- [3] J. Matarrubia, A. García-Cabañes, J.L. Plaza, F. Agulló-López, M. Carrascosa. J. Phys. D: Appl. Phys., **47** (26), 265101 (2014). DOI: 10.1088/0022-3727/47/26/265101
- [4] M. Carrascosa, A. García-Cabañes, M. Jubera, J.B. Ramiro, F. Agulló-López. Appl. Phys. Rev., **2** (4), 040605 (2015). DOI: 10.1063/1.4929374
- [5] A. Blázquez-Castro, A. García-Cabañes, M. Carrascosa. Appl. Phys. Rev., **5** (4), 41101 (2018). DOI: 10.1063/1.5044472
- [6] К.М. Мамбетова, С.М. Шандаров, А.И. Татъянников, С.В. Смирнов. Изв. вузов. Физика, **62** (4), 89 (2019). DOI: 10.17223/00213411/62/4/89

- [7] S. Kar, K.S. Bartwal. *Materials Lett.*, **62** (24), 3934 (2008). DOI: 10.1016/j.matlet.2008.05.031
- [8] D. Sugak, I.I. Syvorotka, U. Yakhnevych, O. Buryu, N. Martynyuk, S. Ubizskii, Ya. Zhydachevskyy, A. Suchocki, H. Kumar, V. Janyani, G. Singh. *Acta Physica Polonica A*, **133** (4), 965 (2018). DOI: 10.12693/APhysPolA.133.965
- [9] K. Peithmann, J. Hukriede, K. Buse, E. Krätzig. *Phys. Rev. B*, **61** (7), 4615 (2000). DOI: 10.1103/PhysRevB.61.4615
- [10] К.М. Мамбетова, Н.Н. Смаль, С.М. Шандаров, Л.Н. Орликов, С.И. Арестов, С.В. Смирнов. *Изв. вузов. Радиофизика*, **57** (8), 675 (2014).
- [11] А.А. Колмаков, А.С. Темерева, Р.И. Анисимов, А.В. Михайленко, С.М. Шандаров, И.В. Тимофеев, М.В. Пятнов. В сб.: *Сборник трудов XXXIII Всероссийской школы-семинара „Волновые явления: физика и применения“ им. А.П. Сухорукова (Волны-2022)*, под ред. А.Н. Калиша (М., 2022), с. 58.
- [12] К.М. Мамбетова, С.М. Шандаров, Л.Н. Орликов, С.И. Арестов, С.В. Смирнов, Л.Я. Серебренников, В.А. Краковский. *Опт. и спектр.*, **126** (6), 23 (2019). DOI: 10.21883/OS.2019.06.47782.31-19
- [13] С.М. Шандаров, В.М. Шандаров, А.Е. Мандель, Н.И. Буримов. *Фоторефрактивные эффекты в электрооптических кристаллах: монография* (Томск: Томск. гос. ун-т систем упр. и радиоэлектроники, 2012).
- [14] А. Анго. *Математика для электро- и радиоинженеров* (М.: Наука, 1967).
- [15] T. Volk, M. Wöhlecke. *Lithium Niobate: Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching*, 1st ed. (Springer Berlin, Heidelberg, 2008). DOI: 10.1007/978-3-540-70766-0
- [16] H. Kogelnik. *Bell. Syst. Techn. J.*, **48** (9), 2909 (1969). DOI: 10.1002/j.1538-7305.1969.tb01198.x
- [17] Л.Н. Магдич, В.Я. Молчанов. *Акустооптические устройства и их применение* (Сов. Радио, М., 1978).
- [18] М.П. Петров, С.И. Степанов, А.В. Хоменко. *Фоторефрактивные кристаллы в когерентной оптике* (Наука, СПб., 1992).