Письма в ЖЭТФ, том 112, вып. 10, с. 644 – 649

Наблюдение фотоиндуцированной проводимости регулярной доменной структуры с наклонными стенками в $MgO:LiNbO_3$ на длине волны 632.8 нм при дифракции Брэгга

Е. Н. Савченков[+1)], *А. В. Дубиков*[+], *А. Е. Шараева*[+], *Н. И. Буримов*[+], *С. М. Шандаров*[+×], *А. А. Есин*[*], *А. Р. Ахматханов*[*], *В. Я. Шур*[*]

[+] *Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, 634050 Томск, Россия*

[*] *Уральский федеральный университет, 620002 Екатеринбург, Россия*

[×] *Центр квантовых технологий, МГУ им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 19 августа 2020 г.
После переработки 15 октября 2020 г.
Принята к публикации 15 октября 2020 г.

Впервые наблюдалось индуцированное излучением с длиной волны 632.8 нм изменение проводимости регулярной доменной структуры (РДС), сформированной в кристалле 5 % $MgO:LiNbO_3$. Оно проявлялось в увеличении скорости релаксации для эффективности дифракции Брэгга на РДС, наблюдаемой после приложения внешнего электрического поля, с ростом интенсивности зондирующего пучка. На начальном участке релаксации, связанной с экранировкой внешнего поля вследствие перераспределения зарядов по проводящим наклонным доменным стенкам РДС, эта зависимость является линейной. Для зондирующего пучка с интенсивностью 49 мВт/мм^2 индуцированная эффективная проводимость РДС, которая оценена как $\sigma_{\text{eff}} = 3.5 \cdot 10^{-9}$ Ом$^{-1}$ м$^{-1}$, более чем на четыре порядка превосходит темновую проводимость монодоменного образца $MgO:LiNbO_3$.

DOI: 10.31857/S1234567820220036

Регулярные доменные структуры (РДС) в кристаллах ниобата лития (LN) являются в настоящее время основой для одного из подходов к развитию нелинейно-оптических методов преобразования спектральных характеристик лазерного излучения [1–6] и электрооптического управления его параметрами [1, 5–8]. РДС в кристаллах LN, создаваемые методами доменной инженерии [1, 9–11], могут иметь доменные стенки с наклоном относительно полярной оси, достигающим 0.2° и более [11–15]. Такие наклонные стенки в сегнетоэлектриках, являющиеся заряженными, благодаря своим уникальным свойствам рассматриваются как перспективные функциональные элементы для реализации реконфигурируемых систем наноэлектроники, квантовой и волноводной фотоники и гибридной оптоэлектроники [9, 11, 14].

Наиболее привлекательным свойством заряженных доменных стенок является двумерная проводимость металлического типа, на порядки превосходящая ее величину для монодоменного кристалла [11–14, 16, 17]. Проводимость заряженных стенок для отдельных доменов изучалась методами атомно-силовой микроскопии (АСМ) [9, 11–14, 17] и наноимпедансной спектроскопии [12]. При этом в образцах $MgO:LiNbO_3$ с изолированными доменами шестиугольной формы сигнал проводимости АСМ наблюдался только при подсветке одной из граней кристалла ультрафиолетовым излучением с энергией кванта, превосходящей ширину его запрещенной зоны [13]. Эти домены имели положительно заряженные доменные стенки и формировались с использованием жидких электродов, а ток АСМ имел порядок единиц пА. Использование для переключения поляризации $MgO:LiNbO_3$ электродов типа металл/металл [14] или комбинации металл/жидкость, в которой электрод с металлическим типом проводимости контактировал с Z-полярной гранью [15], позволило создавать отдельные домены и доменные структуры с положительно заряженными стенками, обладающими стабильной во времени большой проводимостью и в темновых условиях. Например, приложение напряжения $U = 100$ В к структуре, содержащей решетку из 732 областей с длиной 1 мм, переполяризованных методом каллиграфической записи доменов [18] с помощью АСМ с иглой из карбида вольфрама, вызы-

1)email: rossler@mail.ru

вало протекание значительного тока, достигающего около 8 мА [14].

Для РДС с углом наклона доменных стенок к полярной оси кристалла 5 % MgO:LiNbO$_3$ $\alpha = 0.31°$ и пространственным периодом $\Lambda = 8.79$ мкм величина эффективной проводимости была оценена в [19] по кинетике релаксации эффективности дифракции Брэгга, наблюдаемой после приложения постоянного электрического поля, как $\sigma_{\text{eff}} = 5.96 \cdot 10^{-11}$ Ом$^{-1}$ м$^{-1}$. При этом использовался зондирующий лазерный пучок с неизменной интенсивностью и длиной волны $\lambda = 655$ нм, энергия квантов которого была существенно меньшей, чем ширина запрещенной зоны кристалла. Возможность оптического управления проводимостью РДС с наклонными доменными стенками в кристаллах ниобата лития излучением с энергией квантов, не превосходящей ширину запрещенной зоны, ранее не изучалась.

В настоящей работе представлены первые результаты по экспериментальному наблюдению зависимости проводимости РДС с наклонными стенками в кристалле 5 % MgO:LiNbO$_3$ от интенсивности индуцирующего ее зондирующего лазерного пучка с длиной волны 632.8 нм.

Исследуемая РДС с приведенными выше параметрами из [19], показанная на рис. 1, была

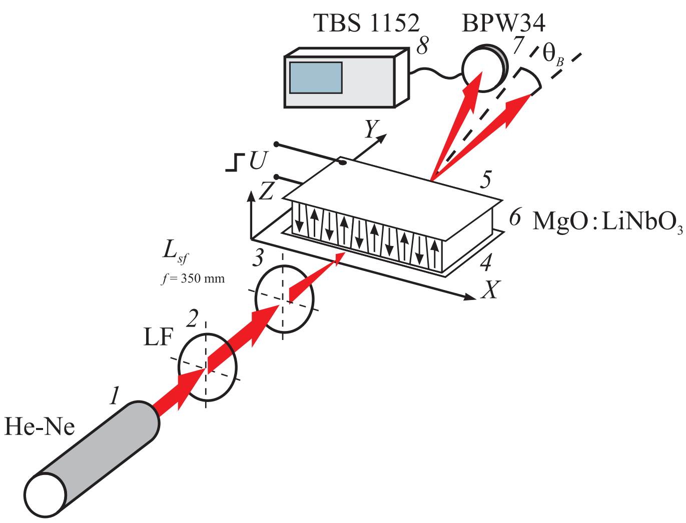

Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки: *1* – He-Ne лазер; *2* – сменный светофильтр; *3* – положительная сферическая линза; *4* и *5* – медные электроды; *6* – кристалл LN с РДС; *7* – pin-фотодиод; *8* – осциллограф

сформирована методом переключения поляризации под действием внешнего пространственно-периодического электрического поля [10] в образце с размерами $40 \times 2 \times 1$ мм^3 вдоль осей X, Y и Z, соответственно. Для приложения внешнего электрического поля к РДС использовались плоские медные электроды, механически прижимаемые к Z-граням кристалла.

В экспериментах использовалось излучение He-Ne лазера с длиной волны $\lambda = 632.8$ нм и выходной мощностью 22 мВт, ослабляемое до необходимой величины набором светофильтров. Пучок лазера имел гауссову форму с радиусом $r_0 = 0.35$ мм и фокусировался примерно на середину входной грани $y = 0$ образца с РДС сферической линзой с фокусным расстоянием $F = 350$ мм. Максимальная входная интенсивность зондирующего пучка I_0 изменялась от 1.4 до 49.0 мВт/мм^2 при радиусе $r_f = 0.2$ мм. Точная настройка образца по углу Брэгга и по вертикальному положению перетяжки пучка осуществлялась в отсутствие приложенного напряжения с помощью pin-фотодиода BPW34, по максимуму мощности в первом дифракционном порядке. Эффективность дифракции Брэгга на доменных стенках имела значение $\eta_{dw} = 0.012$.

Подключение к электродам постоянного напряжения от стабилизированного источника питания осуществлялось тумблером через резистор с номиналом $R = 1$ кОм. При этом происходило увеличение мощности дифрагированного пучка, регистрируемое цифровым осциллографом TBS 1152 на начальном участке, как ступенчатый импульс с длительностью фронта ~ 25 нс. За это время дифракционная эффективность достигала максимального значения, зависящего от приложенного напряжения, а затем наблюдалась ее сравнительно медленная релаксация к исходной величине η_{dw}. Максимальное значение достигаемой дифракционной эффективности $\eta_m \approx 0.13$ не зависело от интенсивности зондирующего пучка I_0 и наблюдалось для приложенного к РДС напряжения $U_0 = \pm 500$ В. Время наблюдения процесса релаксации с помощью цифрового осциллографа TBS 1152 варьировалось в зависимости от I_0 и определялось скоростью развертки, составляющей от 0.025 до 1 с на деление.

Типичные осциллограммы кинетики нормированной дифракционной эффективности $\eta_{\mp}(t)/\eta_m$ на интервале продолжительностью 2 с для значений приложенного напряжения $U_0 = -500$ и $+500$ В представлены на рис. 2a и b соответственно. Видно, что динамика релаксации при положительном и отрицательном напряжениях слегка отличается, а ее скорость растет с интенсивностью зондирующего пучка.

Из представленной на рис. 3 осциллограммы для увеличенной длительности развертки видно, что величина дифракционной эффективности $\eta_+(t)$ воз-

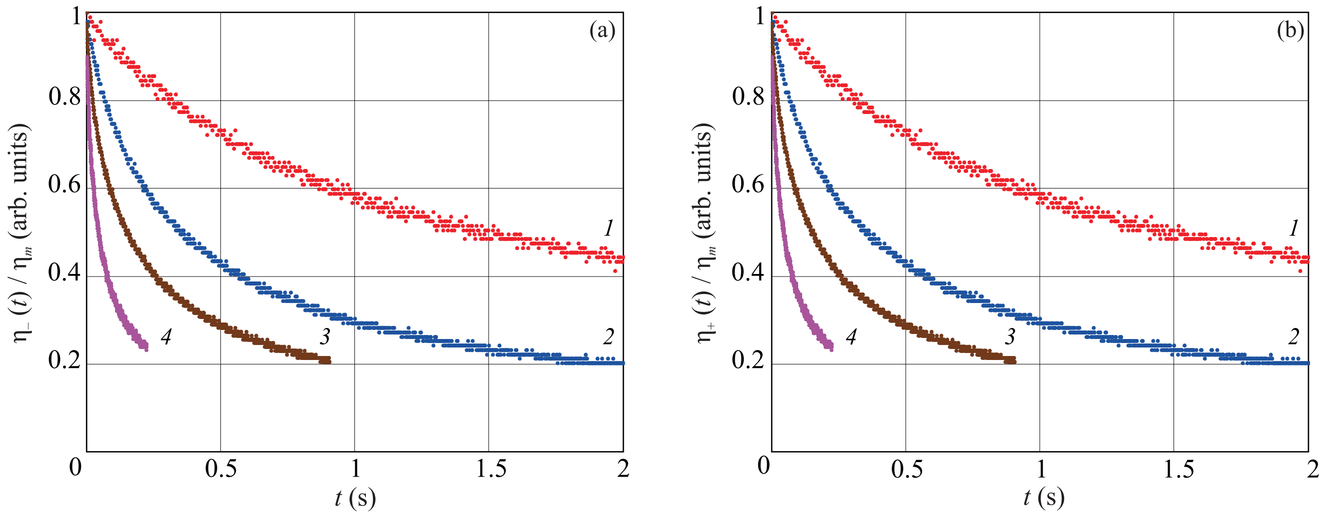

Рис. 2. (Цветной онлайн) Динамика эффективности дифракции Брэгга на РДС в первый порядок, наблюдаемая после приложения внешнего постоянного напряжения $U_0 = -500$ В (a) и $U_0 = +500$ В (b) для зондирующего гауссова пучка с интенсивностью в максимуме $I_0 = 1.4$ (*1*), 6.5 (*2*), 16.0 (*3*) и 49.0 (*4*) мВт/мм^2

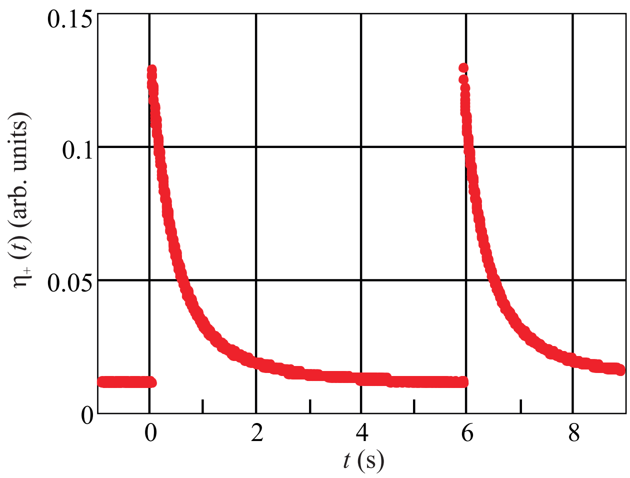

Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость дифракционной эффективности в первом порядке при включении приложенного к РДС напряжения $U_0 = +500$ В при $t_{\text{on}} = 0$ с и его выключении при $t_{\text{off}} = 5.916$ с. Для $t < t_{\text{on}}$ и $t > 11$ с наблюдается дифракция с эффективностью $\eta_{dw} = 0.012$ на доменных стенках

вращается к исходному значению $\eta_{dw} = 0.012$, характерному для дифракции на доменных стенках. Для максимальной интенсивности $I_0 = 3.3$ мВт/мм^2 это происходит за время, составляющее около 5 с. Такое поведение $\eta_+(t)$ свидетельствует о наличии эффекта релаксации именно для возмущений необыкновенного показателя преломления, создаваемых в РДС приложенным электрическим полем.

Характерно, что последующее за релаксацией выключение приложенного внешнего поля при $t = 5.916$ с приводит к быстрому увеличению эффективности дифракции Брэгга до значения, близкого к $\eta_m \approx 0.13$. Используемые в данном эксперименте длительность развертки 1 с на деление и интервал дискретизации осциллограммы $\Delta t = 4$ мс не позволили сделать более точную оценку времени нарастания дифракционной эффективности, чем $\tau_f < \Delta t$.

Для описания процесса релаксации в условиях экспериментально наблюдаемой дифракции Брэгга с достаточно слабой эффективностью воспользуемся приближенной формулой, следующей из известных соотношений [8, 20]

$$\eta(t) \approx \left(\frac{\pi d}{\lambda \cos\theta_B}\right)^2 |\Delta\dot{n}_m^e(t)|^2, \tag{1}$$

где d – длина взаимодействия и θ_B – угол Брэгга. Комплексную амплитуду возмущений показателя преломления необыкновенной волны $\Delta\dot{n}_m^e(t)$ в РДС будем полагать обусловленной однородным электрическим полем $E(t)$ различной полярности и доменными стенками, с некоторым фазовым сдвигом φ между данными составляющими [21]:

$$\Delta\dot{n}_m^e(t) = \pm\Delta n_{eo}(t) + \Delta n_{dw}\exp(i\varphi). \tag{2}$$

С использованием соотношений, приведенных в [8, 21], и в пренебрежении слабым упругооптическим вкладом, эти возмущения могут быть записаны в следующем виде:

$$\Delta n_{eo}(t) = -\frac{1}{2} n_e^3 r_{33} \frac{F_{eo}}{\delta} |E(t)|, \tag{3}$$

$$\Delta n_{dw} = \frac{1}{2} n_e^3 R_{33} P_S^2 F_{dw}. \quad (4)$$

Здесь n_e – необыкновенный показатель преломления, а r_{33} и R_{33} – электрооптические коэффициенты линейного и квадратичного эффектов кристалла; P_S – модуль вектора спонтанной поляризации; F_{eo} и F_{dw} – модули амплитуд Фурье для первых пространственных гармоник, создаваемых в РДС внешним электрическим полем единичной напряженности (eo) и доменными стенками (dw). Параметр $\delta = 1 + \varepsilon_3^r h_a / h$, где ε_3^r – относительная статическая диэлектрическая проницаемость кристалла, учитывает уменьшение электрического поля в кристалле с толщиной h при наличии некоторого воздушного зазора с эффективной толщиной h_a между его Z-поверхностями и металлическими электродами.

Как следует из соотношений (1)–(4), наблюдаемое экспериментально сравнительно медленное уменьшение дифракционной эффективности (рис. 2 и 3) можно связать с релаксацией напряженности электрического поля в области РДС, освещаемой зондирующим пучком. При этом временная зависимость электрического поля в кристалле может быть получена непосредственно из экспериментальных данных для дифракционной эффективности:

$$E(t) = \frac{2\delta\lambda \cos\theta_B}{n_e^3 r_{33} F_{eo} \pi d} \sqrt{\frac{\eta_-(t) + \eta_+(t)}{2} - \eta_{dw}}. \quad (5)$$

Использование соотношения (5), значения $\eta_{dw} = 0.012$ и экспериментальных данных для $\eta_-(t)$ и $\eta_+(t)$, частично представленных на рис. 2, позволило провести расчет динамики релаксации электрического поля в исследуемой РДС с проводящими стенками, результаты которого показаны точками на рис. 4.

Анализ полученных нормированных временных зависимостей показал, что кинетика релаксации электрического поля в кристалле может быть удовлетворительно описана следующей функцией:

$$E(t, I_0) = E_m \exp\{-a_E(I_0) \ln[1 + b_E(I_0)t]\}, \quad (6)$$

с параметрами a_E и b_E, зависящими от максимальной интенсивности I_0 зондирующего гауссова пучка. На рисунке 4 такие аппроксимирующие функции показаны сплошными кривыми.

Характерно, что на начальном участке релаксации, при $b_E t \ll 1$, она имеет чисто экспоненциальный (максвелловский) характер со скоростью $\gamma_0(I_0) = a_E(I_0) b_E(I_0)$. Использование параметров аппроксимации a_E и b_E, полученных при подгонке кривых (6) под представленные на рис. 4 результаты расчета зависимостей $E(t)/E_m$ из экспериментальных дан-

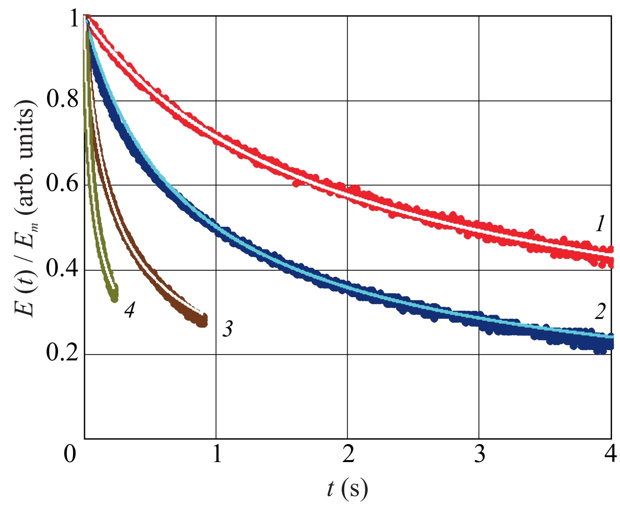

Рис. 4. (Цветной онлайн) Динамика релаксации электрического поля в РДС, рассчитанная по формуле (5) из экспериментальных данных, иллюстрируемых рис. 2 (точки), и ее аппроксимация функцией (6) (сплошные кривые)

ных, позволило найти скорости релаксации электрического поля на начальном участке γ_0. Эти скорости для четырех значений интенсивности зондирующего пучка показаны точками на рис. 5. Представленная

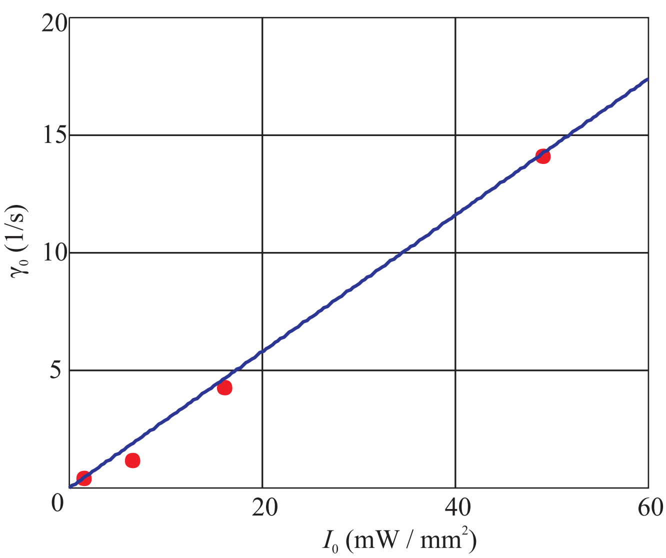

Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость скорости релаксации электрического поля в РДС на начальном участке от интенсивности гауссова зондирующего пучка в максимуме. Точки – расчет из экспериментальных данных, прямая – линейная зависимость с коэффициентом $\beta_E = 0.29 \cdot 10^{-3}$ м^2/Дж

здесь же аппроксимирующая линейная зависимость $\gamma_0(I_0) = \beta_E I_0$ получена для $\beta_E = 0.29 \cdot 10^{-3}$ м^2/Дж. Отклонения экспериментальных точек от данной линейной зависимости можно объяснить погрешностями при измерении дифракционных эффективностей $\eta_-(t)$ и $\eta_+(t)$ и при подгонке аппроксимирующих функций (6) под результаты расчета по формуле (5).

Рассматриваемая релаксация напряженности суммарного электрического поля в кристалле $E(t)$ может быть связана с контактными явлениями и с экранировкой внешнего поля $E_{\text{ext}} \sim U_0/h$, обусловленной перераспределением объемного заряда по РДС. Однако для используемых в экспериментах механически прижимаемых к кристаллу с РДС медных электродов инжекционные токи должны отсутствовать. Кроме того, интенсивность зондирующего гауссова пучка на Z-гранях кристалла не превышает $10^{-5}I_0$, что позволяет не учитывать ее влияние на контактные процессы. Другой причиной формирования электрического поля $E_{\text{int}}(t)$ в РДС, компенсирующего поле E_{ext} в области распространения зондирующего пучка, может быть перераспределение зарядов за счет дрейфового и фотовольтаического механизмов в объеме периодически инвертированных доменов [22, 23]. Как известно [24], формирование поля $E_{\text{int}}(t)$ в этом случае происходит со скоростью $\gamma_{\text{ph}} = 1/\tau_{di} = \sigma_{\text{ph}}/\varepsilon_{33}$, определяемой временем максвелловской релаксации τ_{di}, где σ_{ph} – фотопроводимость и ε_{33} – статическая диэлектрическая проницаемость кристалла. Из результатов измерения фотопроводимости кристалла 4.61 % MgO:LiNbO$_3$ на длине волны $\lambda = 632.8$ нм [25] и значения $\varepsilon_{33} = 2.48 \cdot 10^{-10}$ Ф/м [1], для используемого в экспериментах зондирующего пучка с максимальной интенсивностью $I_0 = 49$ мВт/мм^2, эту скорость можно оценить как $\gamma_{\text{ph}} \sim 10^{-3}$ с$^{-1}$. Сравнение с приведенными на рис. 5 данными показывает, что наблюдаемая скорость формирования компенсирующего поля на четыре порядка превосходит данную оценку, относящуюся к перераспределению заряда в объеме доменов РДС.

Наблюдаемая экспериментально скорость релаксации может быть объяснена при учете особенностей электронных свойств наклонных доменных стенок РДС. Перераспределение зарядов в области наклонных стенок во внешнем поле обуславливает его экранировку. Перераспределение может быть обусловлено как движением свободных носителей, так и образованием и переориентацией существующих дипольных дефектов. Не затрагивая микроскопических причин, оценим необходимую эффективную проводимость кристалла с наклонными РДС.

В предположении максвелловского характера релаксации суммарного электрического поля $E_\Sigma(z,t) = E_{\text{ext}} - E_{\text{int}}(z,t)$ на начальном участке, усредненная по периоду Λ эффективная проводимость исследуемого кристалла LN с РДС может быть найдена как $\sigma_{\text{eff}}(I_0) = \varepsilon_{33}\gamma_0(I_0)$. Из рисунка 3 следует, что при $t \gg 1/\gamma_0$ компенсирующее поле E_{int} становится равным приложенному E_{ext}. При выключении последнего в момент времени t_{off} именно поле E_{int} и определяет быстрое возрастание дифракционной эффективности до значения $\eta(t_{\text{off}}) \approx \eta_m$, наблюдавшегося ранее в момент включения внешнего поля.

Характерно, что эффективная проводимость исследуемого кристалла LN с РДС связана с интенсивностью зондирующего гауссова пучка с $\lambda = 632.8$ нм линейной зависимостью, $\sigma_{\text{eff}}(I_0) = B_{\text{ph}}I_0$, где $B_{\text{ph}} = \varepsilon_{33}\beta_E$. Используя полученную выше оценку для β_E, находим значение параметра $B_{\text{ph}} = 7.2 \times 10^{-14}$ Ом$^{-1}$ Вт$^{-1}$ м. Для зондирующего пучка с максимальной используемой в экспериментах интенсивностью $I_0 = 49$ мВт/мм^2 достигаемая эффективная проводимость может быть оценена как $\sigma_{\text{eff}} = 3.5 \cdot 10^{-9}$ Ом$^{-1}$ м$^{-1}$. Эта величина более чем на четыре порядка превосходит значение темновой проводимости $\sigma_d \leq 1.9 \cdot 10^{-13}$ Ом$^{-1}$ м$^{-1}$ для монодоменного образца MgO:LiNbO$_3$, приведенное в [26]. Наблюдаемая проводимость РДС имеет фотоиндуцированный характер, линейно возрастая с интенсивностью зондирующего пучка.

Таким образом, при дифракции Брэгга на РДС с доменными стенками, наклоненными к полярной оси кристалла 5 % MgO:LiNbO$_3$ на угол $\alpha = \pm 0.31°$, приложение внешнего постоянного электрического поля вначале приводит к быстрому увеличению эффективности, а затем к медленной ее релаксации, скорость которой растет с интенсивностью зондирующего пучка с $\lambda = 632.8$ нм. Эти особенности процесса релаксации можно связать с экранировкой приложенного внешнего электрического поля вследствие фотоиндуцированного изменения проводимости наклонных доменных стенок РДС излучением света с энергией квантов, существенно меньшей, чем ширина запрещенной зоны LN в монодоменном состоянии.

Авторы благодарны С. В. Смирнову и А. И. Бруневу за помощь в проведении экспериментов и полезные консультации.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Госзадания на 2020–2022 годы (задание FEWM-2020-0038/3).

1. P. Ferrari, S. Grilli, P. DeNatale (editors), *Ferroelectric Crystals for Photonic Applications*, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg (2014).

2. А. В. Никандров, А. С. Чиркин, Письма в ЖЭТФ **76**, 333 (2002).
3. Г. Д. Лаптев, А. А. Новиков, А. С. Чиркин, Письма в ЖЭТФ **78**, 45 (2003).
4. А. Н. Тучак, Г. Н. Гольцман, Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, С. В. Селиверстов, М. И. Финкель, А. В. Шепелев, П. В. Якунин, Письма в ЖЭТФ **96**, 97 (2012).
5. L. A. Rios, C. E. Minor, N. A. Barboza, and R. S. Cudney, Opt. Express **26**, 17591 (2018).
6. T. Ding, Y. Zheng, and X. Chen, Opt. Lett. **44**, 1524 (2019).
7. M. Yamada, Rev. Sci. Instrum. **71**, 4010 (2000).
8. I. Mhaouech, V. Coda, G. Montemezzani, M. Chauvet, and L. Guilbert, Opt. Lett. **41**, 4174 (2016).
9. G. Catalan, J. Seidel, R. Ramesh, and J. F. Scott, Rev. Mod. Phys. **84**, 119 (2012).
10. V. Ya. Shur, A. R. Akhmatkhanov, and I. S. Baturin, Appl. Phys. Rev. **2**, 040604 (2015).
11. P. S. Bednyakov, B. I. Sturman, T. Sluka, A. K. Tagantsev, and P. V. Yudin, NPJ Computational Materials **4**, 65 (2018).
12. M. Schröder, X. Chen, A. Haußmann, A. Thiessen, J. Poppe, D. A. Bonnell, and L. M. Eng, Materials Research Express **1**, 035012 (2014).
13. M. Schröder, A. Haußmann, A. Thiessen, E. Soergel, T. Woike, and L. M. Eng, Adv. Funct. Mater. **22**, 3936 (2012).
14. C. S. Werner, S. J. Herr, K. Buse, B. Sturman, E. Soegel, C. Razzaghi, and I. Breunig, Sci. Rep. **7**, 9862 (2017).
15. A. A. Esin, A. R. Akhmatkhanov, and V. Ya. Shur, Appl. Phys. Lett. **114**, 092901 (2019).
16. V. Ya. Shur, I. S. Baturin, A. R. Akhmatkhanov, D. S. Chezganov, and A. A. Esin, Appl. Phys. Lett. **103**, 102905 (2013).
17. T. R. Volk, R. V. Gainutdinov, and H. H. Zhang, Appl. Phys. Lett. **110**, 132905 (2017).
18. M. Mohageg, D. V. Strekalov, A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, V. S. Ilchenko, and L. Maleki, Opt. Express **13**, 3408 (2005).
19. Е. Н. Савченков, С. М. Шандаров, С. В. Смирнов, А. А. Есин, А. Р. Ахматханов, В. Я. Шур, Письма в ЖЭТФ **110**, 165 (2019).
20. H. Kogelnik, Bell Syst. Tech. J. **49**, 2909 (1969).
21. S. M. Shandarov, E. N. Savchenkov, M. V. Borodin, A. E. Mandel, A. R. Akhmatkhanov, and V. Ya. Shur, Ferroelectrics **542**, 58 (2019).
22. M. Taya, M. C. Bashaw, and M. M. Fejer, Opt. Lett. **21**, 857 (1996).
23. B. Sturman, M. Aguilar, F. Agulló-López, V. Pruneri, and P. G. Kazansky, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 2641 (1997).
24. T. Volk and M. Wöhlecke, *Lithium Niobate: Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching*, Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg (2008).
25. M. Aillerie, P. Bourson, M. Mostefa, F. Abdi, and M. D. Fontana, J. Phys: Conf. Ser. **416**, 012002 (2013).
26. M. C. Wengler, U. Heinemeyer, E. Soergel, and K. Buse, J. Appl. Phys. **98**, 064104 (2005).