

ИНДЕКС 3649

Препринт ЕФИ-1401(12)-93

В.В. Обуховский*, С.И. Карабекян

ЭЛЕКТРИЧЕСКИ ЗАРЯЖЕННЫЕ КРИСТАЛЛЫ $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$

Обнаружено, что кристаллы LiNbO_3 легированные Cu могут находиться в особом электрически неоднородном состоянии. При этом объем кристалла равномерно заряжен электрическим зарядом одного знака (с плотностью порядка 10^{12} зарядов электрона на см^3), а компенсирующий заряд распределен по всем боковым граням образца.

Ереванский физический институт

Ереван 1993

* Киевский университет им. Т.Шевченко

Preprint YERPFI-1401(12)-93

V.V. OBUKHOVSKY, S.I. KARABEKIAN

THE ELECTRICALLY CHARGED $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ CRYSTALS

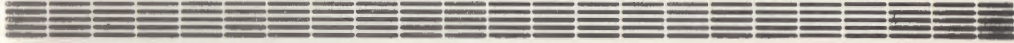
It is found, the copper doped LiNbO_3 crystals are apt to exist in special - electrically charged state. In this case a space of crystals has homogeneously distributed charge (density $\approx 10^{12} e_0/\text{cm}^3$), and compensating charge are on all faces of crystalline sample.

Yerevan Physics Institute

Yerevan 1993

Препринт ЕФИ-1401(12)-93

ԵՐԵՎԱՆԻ ՖԻԶԻԿԱՅԻ ԻՆՍՏԻՏՈՒՏ
ЕРЕВАНСКИЙ ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ
YEREVAN PHYSICS INSTITUTE



В.В. ОБУХОВСКИЙ, С.И. КАРАБЕКЯН

ЭЛЕКТРИЧЕСКИ ЗАРЯЖЕННЫЕ КРИСТАЛЛЫ $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$

Ереван 1993

ԷԼԵԿՏՐԱԿԱՆՈՐԵՆ ԼԻՑՔԱՎՈՐՎԱԾ LiNbO_3 ԲՅՈՒՐԵՂՆԵՐ

Հայտնաբերվել է, որ Cu -ով լեզիրված LiNbO_3 բյուրեղները կառուցված են գտնվել էլեկտրականորեն անհավասար վիճակում: Ընդ որում բյուրեղի ծավալը հավասարաչափ լիցքավորված է միանիշ էլեկտրական իջքով (էլեկտրոնի լիցքերի խտությունը $\approx 10^{12}$ $\text{e}_0/\text{սմ}^3$) իսկ փոխառու-ող լիցքը բաշխված է նմուշի ամբողջ եզրերով:

Երևանի ֆիզիկայի ինստիտուտ

Երևան 1993

Տ. Շեվչենկոյի ևս. Կիևի համալսարան

Хорошо известно, что в процессе выращивания могут быть получены кристаллы, обладающие постоянными векторными характеристиками: магнитным моментом (ферромагнетики), спонтанной поляризацией (сегнетоэлектрики) [1].

Нами обнаружено, что некоторые сегнетоэлектрические кристаллы могут обладать объемно распределенным электрическим зарядом одного знака, а нейтрализующий заряд распределен по поверхности образца.

Були LiNbO_3 легированные Cu (концентрация 0,1–0,3 вес.%) выращивались методом Чохральского. Из разных частей были вырезались образцы, ориентированные по осям X, Y, Z . При этом продольный размер l_y выбирался существенно большим поперечных ($l_x \sim l_z$). После облучения образцов светом длиной волны $\lambda = 0,44 \mu\text{м}$ и интенсивностью ≈ 10 мВт интегральный электрический заряд и макроскопический дипольный момент в исследуемых образцах отсутствовали.

Однако оптические измерения показали, что внутри кристаллы имеют неоднородное электрическое поле. В наших экспериментах

монохроматическое излучение, направленное вдоль кристаллографической оси Z , проходило через скрещенные поляризаторы между которыми размещался исследуемый образец [2]. Типичные коноскопические картинки в разных частях кристалла показаны на рис. 1.

Как видно, в центральной части, вблизи от $x=0, y=0$ (координаты отсчитываются от середины прямоугольного образца) кристалл является одноосным. Вне центральной части образца кристалл является двуосным, причем максимальная величина двуосности зафиксирована на краях $x = \pm l_x/2$. Как видно из фотографий, приведенных на рис. 1., плоскости P_1, P_2 проходящие через оптические оси, развернуты под углами $\psi \approx \pm 45^\circ$ по отношению к плоскости XZ и образуют прямой угол друг с другом. Особо подчеркнем, что во всех случаях двуосность пропадала в точке $x=0, y=0$, расположенной посередине кристаллической пластины вне зависимости от места були, откуда вырезался образец. Отметим также, что эффект неоднородной двуосности является термически нестабильным. При нагреве образца до $T=700^\circ\text{C}$ и выдержке при этой температуре в течение 20 минут, двуосность исчезала.

Теоретический анализ показал, что пьезоэлектрический эффект в средах симметрии $3m$ не может объяснить получаемые результаты, если внутренние напряжения носят характер гидростатического давления, одноосного сжатия или сдвига в любой из плоскостей. Отсутствие двуосности в центре всех образцов, а также восстановление оптической однородности при достаточно кратковременном отжиге указывает на то, что изучаемый эффект нельзя объяснить неравномерностью распределения примеси в выращенном кристалле.

Покажем, что возмущение, действующее на кристаллы и приво-

дущее к возникновению наблюдаемых особенностей двусосности может быть связано с наличием неоднородного внутреннего поля $E^0(r)$ и вызываемого им электрооптического эффекта. Действительно, пусть при облучении кристаллов высокоэнергетичными фотонами весь объем кристалла равномерно заряжается с плотностью $\rho_0 = \text{const}$. А на границах образца формируется поверхностный заряд противоположного знака, плотность которого обозначим $\sigma(r)$. Несмотря на соблюдение условия интегральной электронейтральности $\int \sigma(r) ds = -\rho_0 V$ внутри объема V кристалла формируется поле $E^0(r)$ имеющее, в общем случае, все три компоненты: $E_x^0 \neq 0$, $E_y^0 \neq 0$, $E_z^0 \neq 0$. Однако их влияние на форму коноскопических картин существенно отличается.

Для качественного анализа ограничимся рассмотрением нескольких простейших случаев:

1. Пусть поле $E \parallel OZ$. С учетом свойств симметрии тензора линейного электрооптического эффекта γ_{ijk} в кристаллах симметрии 3m [3] уравнение оптической индикатрисы нетрудно записать в следующем виде

$$(a_0^2 + \gamma_{13} E_z) \cdot (x_L^2 + y_L^2) + (c_0^2 + \gamma_{33} E_z) \cdot z_L^2 = 1, \quad (1)$$

где $a_0^2 = 1/\epsilon_{xx}^0$, $c_0^2 = 1/\epsilon_{zz}^0$; ϵ_{nm}^0 — компоненты невозмущенного тензора диэлектрической проницаемости; x_L, y_L, z_L — безразмерные координаты оптической индикатрисы кристалла.

Отсюда видно, что под действием E_z меняется только степень вытянутости одноосного эллипсоида, но явление двусосности не возникает.

2. В плоскости $y=0$ благодаря симметрии системы поле $E \parallel OX$.

Изучая распространение света вдоль кристаллографической оси Z нужно рассмотреть сечение эллипсоида оптической индикатрисы плоскостью $z_L=0$. Уравнение этого сечения

$$a_0^2(x_L^2 + y_L^2) - 2\gamma_{22} E_x x_L y_L = 1 \quad (2)$$

свидетельствует о том, что поле E_x деформирует оптическую индикатрису под углами $\pm 45^\circ$. Возникающие при этом бинормали также лежат в плоскостях, проходящих через ось Z и образующих углы примерно равные $\pm 45^\circ$ с осями X, Y (в общем случае нужно учитывать влияние на положение плоскости бинормалей члена $2\gamma_{51} E_x x_L z_L$). Как видно из результатов, приведенных на рис. 2, это полностью соответствует экспериментальным данным. Угол $\Delta\alpha_0$ между бинормальями определяется соотношением $\text{tg}^2(\Delta\alpha_0/2) = n_{02}^1 \gamma_{22} E_x / \Delta n_{oe}$ ($\Delta n_{oe} = n_o - n_e$ — двулучепреломление кристалла).

3. В плоскости $x=0$ компонента электростатического поля $E_y \neq 0$, но $E_x = 0$. По-прежнему интересуясь распространением света только вдоль оси Z и рассматривая соответствующее сечение ($z_L=0$) оптической индикатрисы, находим

$$(a_0^2 - \gamma_{22} E_y) \cdot x_L^2 + (a_0^2 + \gamma_{22} E_y) \cdot y_L^2 = 1 \quad (3)$$

В этом случае плоскость бинормалей параллельна (или перпендикулярна) к плоскости ZY . Если скрещенные поляризаторы направлены вдоль OX, OY , то выходы обоих оптических осей попадают в область креста. Однако из уравнения (3) следует, что кольца коноскопических картин должны быть сжаты вдоль OX и растянуты вдоль OY

если направление поля E_y совпадает с осью OY , и наоборот, если поле E_y имеет противоположное направление. Именно это можно наблюдать на коноскопических картинах.

В наших условиях наиболее существенные изменения эллипсоида показателей преломления, связанные с особенностями пространственного распределения компоненты поля E_x , наблюдаются в плоскости $y=0$, рассмотрением которой в дальнейшем мы ограничимся.

Пренебрегая при оценке краевыми эффектами и учитывая наличие на поверхности образца компенсирующего заряда σ , в рамках нашей модели (см. рис. 2), находим результирующее распределение поля вдоль оси X :

$$E^0(x, 0, 0) = \epsilon_x E_x^0(x), \quad E_x^0(x) = \theta(l_x/2 - |x|) \frac{4\pi\rho_0}{\epsilon_{xx}^s} x. \quad (4)$$

Здесь ϵ_{xx}^s — компонента статической диэлектрической проницаемости, ϵ_x — единичный вектор вдоль направления OX , $\theta(a)$ — функция ступеньки, равная +1 если $a > 0$ и нулю если $a < 0$, координата x отсчитывается от центра плоскопараллельной пластины (рис. 2). Угол между плоскостью главных осей (бинормалей) и направлением OX обозначим ψ . Если направление распространения света совпадает с кристаллографической осью OZ , и $E^0 \parallel OX$, то значение ψ не зависит от величины приложенного поля E_x^0 , а определяется только $\text{sign} E_x^0(x)$. Если объемный заряд ρ_0 положителен, то в области $x < 0$ угол $\psi = +\pi/4$, а при $x > 0$ величина $\psi = -\pi/4$ (при $\rho_0 < 0$ — наоборот).

Отсутствие двуосности в центре образца ($x=0$, $y=0$) вне зависимости от места расположения образца относительно оси роста булы и максимальная двуосность при $x = \pm l_x/2$ хорошо согласуются с

характером электрооптической деформации эллипсоида показателей преломления, вызванной полем $E_x^0(x)$.

Максимальная величина измеренной двуосности составляет $\Delta\alpha_0 \approx 3^{\circ}$ что соответствует внутреннему полю $E_{\text{max}}^0 \approx 10^4$ В/см. В соответствии с [4] для создания такого поля требуется заряд $\rho_0 = 4,6 \cdot 10^{-7}$ кул/см³ что отвечает объемной плотности избыточных носителей заряда $N_0 = |\rho_0/e_0| = 3 \cdot 10^{12}$ см⁻³. Для сравнения можно указать, что при легировании ниобата лития медью с концентрацией 0,1 вес.%, плотность расположения примесных центров составляет $N_D \approx 10^{18}$ см⁻³. Как видно, при этом N_D намного превышает N_0 .

Заметим, что сам факт существования внутренних электрических полей в кристаллах обсуждался [4-6]. Однако обычно полагалось, что в материалах сегнетоэлектрических классов (к которым относится ниобат лития) внутреннее статическое поле E должно быть направлено вдоль полярного направления OZ . При этом причина появления поперечных компонент E_x , E_y оставалась невыясненной (см., например, обсуждение в [6], стр. 115).

Полученные нами результаты хорошо согласуются с предположением о том, что легированные диэлектрические кристаллы ниобата лития после облучения интенсивным высокоэнергетичным излучением могут обладать объемно распределенным зарядом, когда все компоненты внутреннего поля $E_{x,y,z}$ в общем случае отличны от нуля.

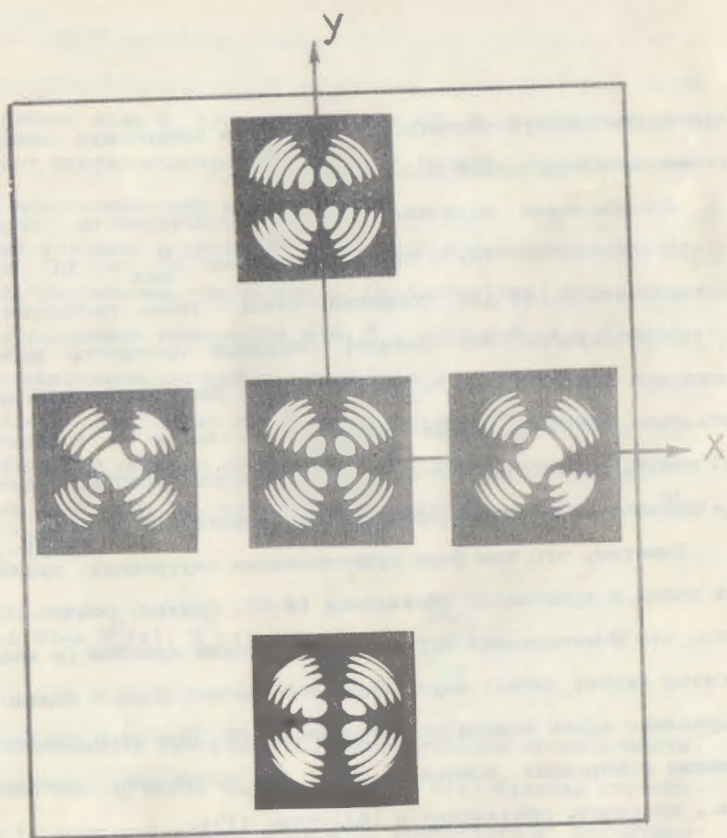


Рис. 1. Схема распределения зарядов (а) и электрического поля (б) в кристаллической пластине.

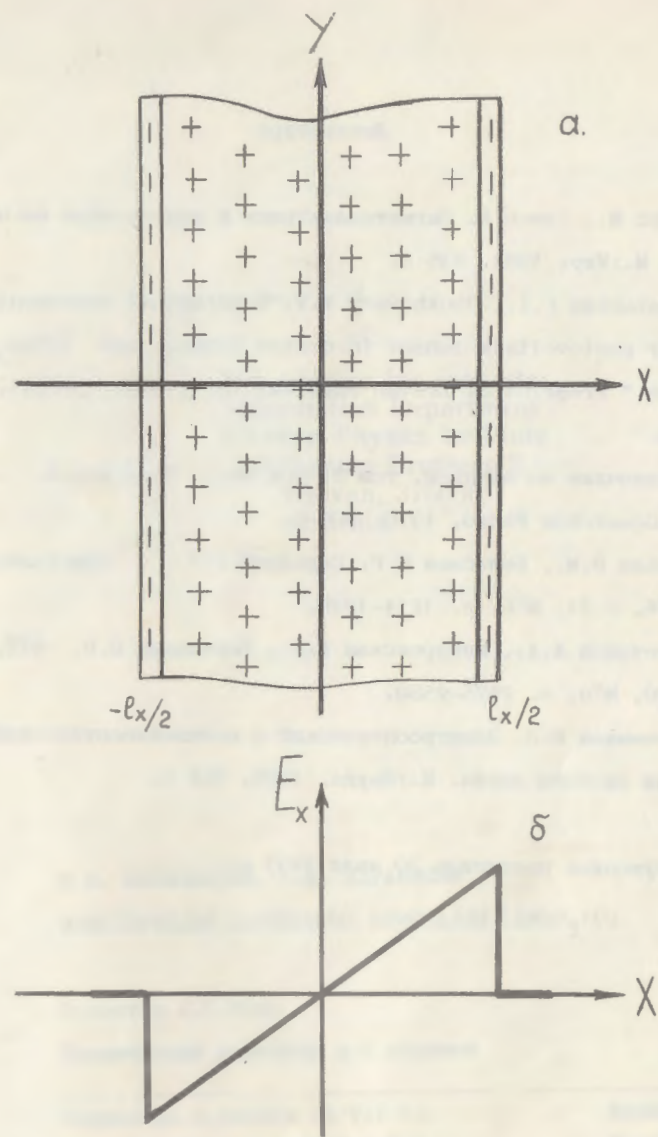


Рис. 2. Коноскопические картины в Z-срезе кристалла LiNbO_3 (расположение фотографий отвечает местам проведения измерений в прямоугольном образце).

Литература

1. Лайнс М., Гласс А. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. М.:Мир, 1981, 736 с.
2. Karabekian E.I., Obukhovsky V.V. "Nondiagonal component of linear photovoltaic tensor in doped LiNbO_3 and LiTaO_3 crystals." Preprint of Erevan Physical Institute, 1370(1), 1992, 14p.
3. Справочник по лазерам. том 2. Под ред. Прохоровой А. М., М.:Советское Радио, 1978, 400 с.
4. Авакян Э.М., Белабаев К.Г., Саркисов В.Х. Кристаллография, 1976, т.21, №6, с. 1214-1215.
5. Блистанов А.А., Макаревская Е.В., Гераськин В.В. ФТТ, 1978, т.20, №9, с. 2575-2580.
6. Кузьминов Ю.С. Электрооптический и нелинейнооптический кристалл ниобата лития. М.:Наука, 1987, 264 с.

Рукопись поступила 20 июля 1993 г.

The address for requests:
Information Department
Yerevan Physics Institute
Alikhanian Brothers 2,
Yerevan, 375036
Armenia,

В.В. ОБУХОВСКИЙ, С.И. КАРАБЕКЯН
ЭЛЕКТРИЧЕСКИ ЗАРЯЖЕННЫЕ КРИСТАЛЛЫ $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$

Редактор А.С.Есин

Технический редактор А.С.Абрамян

Подписано в печать 22/VII-93.

Формат 80x84/16

Осфетная печать. Уч. изд. л. 0,5

Тираж 100 экз.

Зак. тип. 104

Индекс 3649

Отпечатано в Ереванском физическом институте

Ереван 36, ул. Братьев Аликханян, 2