

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение
высшего образования «Томский государственный университет
систем управления и радиоэлектроники»

УДК 66.088 , 621.38

На правах рукописи



Мамбетова Ксения Мустафиевна

ГЕНЕРАЦИЯ ЭЛЕКТРОННЫХ ПУЧКОВ И АГРЕГИРОВАНИЕ МИКРО-
И НАНОЧАСТИЦ В СИЛЬНЫХ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПОЛЯХ,
ФОРМИРУЕМЫХ НА ПОВЕРХНОСТИ КРИСТАЛЛОВ LiNbO_3
И МИКРОСТРУКТУР $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ ПРИ ТЕРМИЧЕСКОМ
И ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ

Специальность 01.04.04 – Физическая электроника

Диссертация
на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук
профессор Шандаров Станислав Михайлович

Томск – 2021

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	6
ГЛАВА 1 ГЕНЕРАЦИЯ СИЛЬНЫХ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПОЛЕЙ, ОСНОВАННАЯ НА ТЕРМО- И ФОТОИНДУЦИРОВАННЫХ ЯВЛЕНИЯХ В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ, И ЕЁ ИСПОЛЬЗОВАНИЕ В ЭЛЕКТРОННЫХ УСТРОЙСТВАХ	20
1.1 Сегнетоэлектрики	20
1.1.1 Свойства сегнетоэлектриков	20
1.1.2 Ниобат лития	22
1.2 Генерация сильных электрических полей в сегнетоэлектрических кристаллах ниобата и танталата лития	24
1.2.1 Пироэлектрический эффект	24
1.2.2 Пироэлектрические устройства генерации рентгеновского и нейтронного излучения на основе ниобата и танталата лития	39
1.2.3 Фотогальванический эффект	43
1.3 Выводы	55
ГЛАВА 2 ТЕХНОЛОГИЯ ДИФФУЗИОННОГО ЛЕГИРОВАНИЯ ПЛАСТИН НИОБАТА ЛИТИЯ ИОНАМИ МЕДИ	57
2.1 Технология напыления пленок	58
2.1.1 Подготовка подложек	58
2.1.2 Методы нанесения пленок	60
2.2 Технология диффузионного легирования	61
2.3 Исследование спектральных зависимостей оптического пропускания и расчет концентрации примесей	63
2.4 Исследование распределения примеси в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 – № 7, полученных диффузионным легированием	67
2.5 Выводы	73

ГЛАВА 3 ФОРМИРОВАНИЕ ПОЛЯ ПРОСТРАНСТВЕННОГО ЗАРЯДА ФОТОРЕФРАКТИВНЫХ РЕШЕТОК В ПЛАСТИНАХ $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-СРЕЗА.....	75
3.1 Экспериментальная установка и методика экспериментального исследования динамики формирования поля пространственного заряда.....	76
3.2 Экспериментальные исследования динамики формирования фоторефрактивных решеток излучением с длиной волны 532 нм в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза.....	78
3.3 Формирование фоторефрактивных решеток излучением с длиной волны 532 нм в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза на начальном участке	86
3.4 Динамика формирования поля пространственного заряда.....	90
в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза	90
3.5 Эффективность дифракции считывающего светового пучка на фоторефрактивной решетке в пластине $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ для начального участка записи	95
3.6 Определение констант Гласса образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с поверхностным и объемным легированием по динамике дифракционной эффективности на начальном участке	97
3.7 Выводы	102
ГЛАВА 4 АГРЕГИРОВАНИЕ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ И МЕТАЛЛИЧЕСКИХ МИКРО- И НАНОЧАСТИЦ НА ПОВЕРХНОСТИ ЛЕГИРОВАННЫХ МЕДЬЮ КРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ ПРИ ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ	105
4.1 Моделирование динамики поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза	106
4.2 Методика эксперимента по агрегированию микро- и наночастиц на поверхности пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза.....	114
4.3 Агрегирование микро- и наночастиц на поверхности пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза	117
4.3.1 Экспериментальное исследование агрегирования микро- и наночастиц фоторефрактивной решеткой на поверхности образца № 5	117

4.3.2 Экспериментальное исследование агрегирования микро- и наночастиц электрическим полем, создаваемым на поверхности образца № 5 при его засветке гауссовым пучком с радиальной симметрией.....	125
4.3.3 Экспериментальное исследование агрегирования наночастиц фоторефрактивными решетками на поверхности образцов № 8 и № 9	126
4.4 Моделирование распределений диэлектрофоретических сил, создаваемых полем пространственного заряда фоторефрактивной решетки над поверхностью пластины $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза.....	129
4.4.1 Диэлектрофоретические силы, действующие на нейтральные частицы в электрическом поле.....	130
4.4.2 Распределение электрического поля над поверхностью кристалла, создаваемое исключительно тангенциальной составляющей поля фоторефрактивной решетки, записываемой одномерными гауссовыми пучками	132
4.4.3 Анализ распределения диэлектрофоретических сил, индуцированных засветкой одномерным гауссовым световым пучком над поверхностью пластины X-среза ниобата лития, диффузионно-легированной фотовольтаически активной примесью	135
4.5 Экспериментальное исследование агрегирования наночастиц электрическим полем, создаваемым на поверхности микроструктурированного образца № 5 при его засветке эллиптическими гауссовыми пучками	139
4.6 Выводы	144
ГЛАВА 5 ДИНАМИКА ПИРОЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ГЕНЕРАЦИИ ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИМИ ОБРАЗЦАМИ НИОБАТА ЛИТИЯ	148
5.1 Пироэлектрическая генерация электронных пучков и рентгеновского излучения монокристаллическими образцами ниобата лития при давлении в форвакуумном диапазоне	149
5.1.1 Экспериментальная установка и методика эксперимента при давлении в форвакуумном диапазоне	149

5.1.2 Динамика пироэлектрической генерации электронного пучка образцами Z-среза ниобата лития при давлении в форвакуумном диапазоне.....	152
5.1.3 Регистрация рентгеновского излучения при пироэлектрической генерации электронного пучка образцами Z-среза ниобата лития для давлении в форвакуумном диапазоне.....	157
5.2 Динамика пироэлектрической генерации электронного пучка образцами Z-среза ниобата лития при атмосферном давлении.....	160
5.2.1 Диодный узел для исследования динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития	161
5.2.2 Методика экспериментального исследования динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития	166
5.2.3 Динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития	169
5.2.4 Анализ пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития	182
5.3 Выводы	185
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	187
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ.....	192
Приложение А. Акты внедрения	208

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность темы исследования

Сильные электрические поля большой напряженности, формируемые в сегнетоэлектрических кристаллах вследствие фотогальванического (называемого также фотовольтаическим), пироэлектрического и пьезоэлектрического эффектов, являются в настоящее время предметом исследований, имеющих своей целью создание эффективных твердотельных источников электронных пучков, рентгеновского и нейтронного излучения [Brownridge, J.D. Investigations of pyroelectric generation of x-rays / J.D. Brownridge, Sol Raboy // J. Appl. Phys. 1999. V. 86. № 11. P. 640; Kukhtarev, N.V. Pyroelectric and photogalvanic crystal accelerators / N.V. Kukhtarev [et al.] // J. Appl. Phys. 2009. V. 106. OP. 014111], а также реализацию оптически управляемых манипуляторов микро- и наночастицами (оптических пинцетов) [Villarroel, J. Photovoltaic versus optical tweezers / J. Villarroel [et al.] // Opt Express. 2011. V. 19. № 24. P. 24320-30; Carrascosa, M. LiNbO₃: A photovoltaic substrate for massive parallel manipulation and patterning of nano-objects / M. Carrascosa [et al.] // Appl. Phys. Rev. 2015. V. 2. № 4. P. 040605]. Сегнетоэлектрические кристаллы ниобата лития (LiNbO₃), характеризующиеся высокой температурой Кюри, хорошими пироэлектрическими и диэлектрическими свойствами, допускающие варьирование в широких пределах своих фотогальванических параметров и фотопроводимости путем легирования фоторефрактивными и нефоторефрактивными примесями [Volk, T. Lithium Niobate: Defects, Photorefractive and Ferroelectric Switching / T. Volk, M. Wöhlecke. Berlin-Heidelberg: Springer-Verlag, 2008. 247 p.; Peithmann, K. Photorefractive properties of LiNbO₃ crystals doped by copper diffusion / K. Peithmann [et al.] // Phys. Rev. B. 2001. V. 61. № 7. P. 4615–4620], являются перспективными материалами для создания на их основе элементов и микроструктур, использующих генерацию сильных электрических полей с напряженностью 10^5 В/м и более при термическом и лазерном воздействии.

Перспективным методом создания микроструктур на основе ниобата лития является диффузионное легирование [Peithmann, K. Photorefractive properties of LiNbO₃ crystals doped by copper diffusion / K. Peithmann [et al.] // Phys. Rev. B. 2001. V. 61. № 7. P. 4615–4620], позволяющее управлять фотовольтаическими и фотопроводящими параметрами поверхностного слоя пластин полярного и неполярных срезов в значительных пределах. Это делает возможным оптимизацию условий оптически управляемого формирования над их поверхностью пространственных распределений сильных электрических полей. Диффузионное легирование может быть реализовано для коммерчески доступных пластин конгруэнтного ниобата лития; при этом по сравнению с традиционным способом легирования путем добавления примеси в исходную шихту, используемую для роста монокристаллического образца, оно имеет важные преимущества – возможность регулирования концентрации примеси и толщины микроструктурированного слоя. Разработанная в [Peithmann, K. Photorefractive properties of LiNbO₃ crystals doped by copper diffusion / K. Peithmann [et al.] // Phys. Rev. B. 2001. V. 61. № 7. P. 4615–4620] методика диффузионного легирования, нацеленная на получение образцов LiNbO₃:Cu с однородным распределением ионов меди по толщине, составляющей 0,5 или 1 мм, продемонстрировала возможность создания фоторефрактивных элементов, в которых максимально достигаемые значения напряженности электрического поля можно оценить как $\sim 10^7$ В/м. В связи с этим, актуальным является практическая реализация технологии диффузионного легирования коммерчески доступных пластин ниобата лития ионами Cu и отработка режимов, позволяющих создавать на её основе образцы с предсказуемыми распределениями фотовольтаических и фоторефрактивных свойств в приповерхностной области. Актуальными являются и задачи определения распределения концентрации ионов меди Cu⁺ и Cu²⁺ в приповерхностной области полученных образцов LiNbO₃:Cu и анализа формирования в ней поля пространственного заряда фоторефрактивных решеток, в том числе и при освещении интерференционной картиной с высоким контрастом.

Сильные электрические поля, возникающие над поверхностью легированных ионами Fe и Cu кристаллов ниобата лития при лазерном воздействии за счет фотогальванического эффекта, представляют большой интерес для развития метода фотогальванического пинцета для манипулирования микро- и нанообъектами. В настоящее время активно исследуется использование легированных ионами Fe монокристаллов ниобата лития в качестве основы при конструировании лаборатории на чипе для управления биологическими объектами [Blázquez-Castro, A. Biological applications of ferroelectric materials / A. Blázquez-Castro, A. García-Cabañes, M. Carrascosa // *Applied Physics Reviews*. 2018. V. 5. P. 041101], так как данный метод позволяет неоднократно использовать монокристаллическую подложку и свести к минимуму вред от перегрева захватываемых частиц за счёт использования маломощного источника излучения. Таким образом, анализ формирования лазерными пучками над поверхностью фоторефрактивных кристаллов и микроструктур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ распределений эванесцентных электрических полей и создаваемых ими сил, действующих на микро- и наночастицы, требует дальнейшего развития.

При термическом воздействии на монокристаллические образцы LiNbO_3 полярного среза формирующиеся за счет пьезоэлектрического эффекта сильные электрические поля могут приводить к импульсной эмиссии электронов [Bourim, E.M. Pyroelectric electron emission from $-Z$ face polar surface of lithium niobate monodomain single crystal / E.M. Bourim [et al] // *J. Electroceram.* 2006. V. 17. P. 479–485], что представляет значительный интерес для реализации импульсных генераторов рентгеновского излучения. Однако доза выходного рентгеновского излучения, генерируемого разработанными к настоящему времени пьезоэлектрическими источниками, является недостаточной для полноценной медицинской диагностики и других приложений. В связи с этим актуальными являются исследования физической природы и основных параметров пьезоэлектрической генерации электронных пучков, таких как временные характеристики, достигаемые плотности токов и суммарного переносимого заряда.

Все изложенное выше и определило цель и задачи диссертационной работы.

Целью работы исследование эффектов генерации электронных пучков и агрегирования микро- и наночастиц в сильных электрических полях, формируемых на поверхности кристаллов LiNbO_3 и микроструктур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ при термическом и лазерном воздействии, для развития научного и практического задела, позволяющего реализовать на их основе управляемые твердотельные источники электронов и рентгеновского излучения с улучшенными характеристиками, и фотовольтаические пинцеты.

Для достижения данной **цели** решались следующие основные **задачи**.

1. Создание микроструктур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ путем практической реализации технологии легирования пластин ниобата лития неполярного X -среза ионами Cu методом высокотемпературной диффузии из металлических и оксидных пленок и анализ распределения концентрации ионов меди Cu^+ и Cu^{2+} по глубине диффузионного слоя.

2. Экспериментальные исследования, теоретический анализ и численное моделирование динамики формирования поля пространственного заряда фоторефрактивных микроструктур (решеток) в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ неполярного X -среза при засветке картиной интерференции с контрастом $m \approx 1$, создаваемой лазерными пучками с длиной волны 532 нм.

3. Разработка методики и проведение экспериментального исследования агрегирования микро- и наночастиц электрическими полями, создаваемыми над поверхностью пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X -среза вследствие фотогальванического механизма перераспределения заряда при их засветке как картиной интерференции двух лазерных пучков Гаусса с радиальной симметрией или с эллиптическим поперечным сечением, так и единственным гауссовым пучком такого типа.

4. Анализ распределения диэлектростатических сил, индуцированных над поверхностью пластины X -среза ниобата лития, диффузионно-легированной фотовольтаически активной примесью, в приближении преобладающей в

кристалле компоненты электрической напряженности поля пространственного заряда $E_z(x, z)$, наводимой одномерным гауссовым пучком.

5. Разработка установок, экспериментальных методик и проведение исследований динамики пироэлектрической генерации электронных пучков в микросекундном и наносекундном диапазонах, при термическом воздействии на монокристаллические образцы LiNbO_3 полярного Z-среза, при форвакуумном и атмосферном давлении.

Методы исследования

Для решения поставленных в работе задач применялись технологические, экспериментальные и теоретические методы, а именно:

- высокотемпературная диффузия меди из металлических и оксидных пленок в пластины конгруэнтного ниобата лития неполярного X-среза;

- формирование микроструктурированных распределений поля пространственного заряда (фоторефрактивных решеток) с использованием монокристаллов и микроструктур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ на основе неполярного X-среза и двухпучкового взаимодействия;

- дифракция считывающего пучка с длиной волны 655 нм на пропускающих фоторефрактивных решетках, формируемых двумя лазерными пучками с длиной волны 532 нм;

- теоретический анализ динамики формирования поля пространственного заряда фоторефрактивных решеток в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с диффузионным и объемным легированием, при их засветке картиной интерференции с контрастом $m \approx 1$, создаваемой плоскими световыми волнами, и распределения диэлектрофоретических сил, индуцированных над поверхностью пластины X-среза ниобата лития одномерным гауссовым пучком, в приближении преобладающей в кристалле компоненты электрической напряженности поля пространственного заряда $E_z(x, z)$;

- численное моделирование;

– осциллография токов и напряжений в различных временных диапазонах, включая микросекундную и наносекундную области;

– подгонка аппроксимирующих расчетных зависимостей под экспериментальные данные с использованием метода наименьших квадратов.

Основные научные положения, выносимые на защиту

1. Практически реализованная технология легирования ионами меди пластин X-среза конгруэнтного ниобата лития из металлических и оксидных пленок при температуре 1000 °С характеризуется коэффициентом диффузии от 0,38 до 0,77 мкм²/с для ионов меди в зарядовом состоянии Cu⁺. Она позволила создать экспериментальные образцы микроструктур LiNbO₃:Cu со следующими характеристиками:

– распределение концентрации $C_{\text{Cu}^+}(x)$ описывается функцией Гаусса с полушириной от ~220 до ~320 мкм и максимальными значениями $C_{\text{Cu}^+}(0)$ от $1,0 \cdot 10^{24}$ до $7,8 \cdot 10^{24}$ м⁻³;

– отношение средних концентраций $C_{\text{Cu}^+}/C_{\text{Cu}^{2+}}$ составляет от 0,06 до 0,92, где $C_{\text{Cu}^{2+}}$ относится к ионам меди в зарядовом состоянии Cu²⁺.

2. Микроструктуры LiNbO₃:Cu, полученные диффузионным легированием ионами меди из металлических пленок с толщинами 900 и 400 нм пластин неполярного X-среза конгруэнтного ниобата лития при температуре 1000 °С в течение 9 часов, характеризуются значениями констант Гласса $G_o \approx 10,3 \cdot 10^{-12}$ и $G_e \approx 9,4 \cdot 10^{-12}$ м/В и максимальными значениями концентрации $C_{\text{Cu}^{2+}}^m \approx 1,1 \cdot 10^{26}$ и $6,5 \cdot 10^{25}$ м⁻³, соответственно, что позволяет оценить для них достигаемую на границе $x = 0$ в момент времени t_m максимальную амплитуду поля пространственного заряда, индуцированного при освещении создаваемой излучением с длиной волны 532 нм интерференционной картиной с контрастом $m = 1$, как $E_1^{\text{max}}(0, t_m) \approx 4,2 \cdot 10^6$ и $2,2 \cdot 10^6$ В/м.

3. При распылении на воздухе порошка микро- и наночастиц с диаметрами от 40 нм до 8 мкм их агрегирование сильными электрическими полями, создаваемыми над поверхностью синтезированных микроструктур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза вследствие фотогальванического механизма перераспределения зарядов при засветке на длине волны 532 нм как картиной интерференции с пространственным периодом 45 мкм и контрастом $m \approx 1$ двух лазерных пучков Гаусса с радиальной симметрией или с эллиптическим поперечным сечением, так и единственным гауссовым пучком такого типа, для интенсивности в максимуме, превосходящей 30 мВт/см^2 , уверенно фиксируется визуально при времени экспозиции t , превышающем 30 с.

4. Разработанный диодный узел позволяет регистрировать в наносекундном диапазоне динамику пирозлектрической генерации импульсных электронных пучков при термическом воздействии на монокристаллические образцы полярного Z-среза LiNbO_3 цилиндрической формы с толщиной от 1 до 7,0 мм и диаметром от 5 до 13 мм, в циклах нагрева и охлаждения от 25 до 80 °С при атмосферном давлении. Его использование позволило наблюдать для образца LiNbO_3 с толщиной 7,0 мм и диаметром 13 мм пирозлектрическую генерацию импульсных пучков электронов с временем нарастания переднего фронта от 1 до 1,9 нс, силой тока в максимуме I_{max} от 50 мА до 600 мА, переносимым зарядом q_d от 1,3 до 5,7 нКл, длительностью τ_p по уровню $0,1I_{\text{max}}$ от 24 до 40 нс и по полувысоте – от 4 до 15 нс.

Достоверность научных результатов

В пользу достоверности защищаемых положений свидетельствует:

- качественное совпадение результатов расчетов по выведенным аналитическим выражениям и проведенных экспериментов;
- успешное использование синтезированных образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ как в экспериментах по формированию микроструктурированных распределений поля пространственного заряда при двуволновом взаимодействии лазерных пучков, так и по агрегированию этими полями микро- и наночастиц;
- отсутствием противоречий с экспериментальными данными других работ.

Достоверность полученных экспериментальных результатов базируется на использовании измерительных приборов и оптических элементов с известными характеристиками. При подгонке расчетных зависимостей под экспериментальные данные использовался метод наименьших квадратов. Относительная погрешность для измерений интенсивностей световых волн не превышала 15 %.

Достоверность результатов, полученных при теоретическом анализе и численных расчетах, обеспечивается постановкой задач с использованием обоснованных приближений и известных моделей фотоиндуцированного перераспределения зарядов в кристаллах с фотогальваническим механизмом фоторефрактивного отклика и дифракции света на формируемых в них при двухволновом взаимодействии объемных фазовых решетках.

Полученные в диссертации теоретические и расчетные результаты подтверждаются экспериментами, имеющими качественный характер, а также количественным согласием с экспериментальными данными в пределах погрешности измерений.

Научная новизна диссертационной работы заключается в том, что в ней получены следующие результаты.

1. Теоретически и экспериментально исследована динамика формирования поля пространственного заряда фоторефрактивных решеток в микроструктурах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с диффузионным легированием, при их засветке картиной интерференции с контрастом $m \approx 1$, создаваемой плоскими световыми волнами. Получены соотношения, описывающие динамику формирования пространственных гармоник напряженности электрического поля фоторефрактивных решеток в микроструктурах X-среза на различных глубинах x от границы, учитывающие как распределения концентрации ионов $C_{\text{Cu}^+}(x)$ и $C_{\text{Cu}^{2+}}(x)$, так и соответствующую зависимость суммарной интенсивности записывающих волн $J(x)$, обусловленную оптическим поглощением; определены

значения констант Гласса для трех диффузионно-легированных образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$.

2. Экспериментально реализовано и исследовано структурирование ансамблей, состоящих из диэлектрических ($90\%\text{Al}_2\text{O}_3 + 10\%\text{CeO}_2$; синтетический алмаз АСМ) микро- и наночастиц, а также из микрочастиц TiC с металлическим типом проводимости, на поверхности микроструктур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ неполярного X -среза сильными электрическими полями, создаваемыми вследствие фотогальванического механизма перераспределения заряда при засветке как картиной интерференции двух лазерных пучков Гаусса с радиальной симметрией или с эллиптическим поперечным сечением, так и единственным гауссовым пучком такого типа.

3. Разработан диодный узел и установка для исследования динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития при атмосферном давлении, а также соответствующая методика эксперимента.

4. Экспериментально обнаружены импульсы разряда, соответствующие пироэлектрической генерации электронных пучков с длительностью от 4 до 15 нс, с временем нарастания переднего фронта от 1 до 1,9 нс, с силой тока в максимуме до 600 мА, и с переносимым зарядом до 5,7 нКл, в циклах нагрева и охлаждения от 25 до 80 °С при атмосферном давлении монокристаллического образца полярного Z -среза LiNbO_3 цилиндрической формы с толщиной 7 мм и диаметром 13 мм.

Научная и практическая значимость работы заключается в следующем.

1. Практическая реализация технологии диффузионного легирования коммерчески доступных пластин ниобата лития ионами меди, с проведенной отработкой режимов синтеза, позволяет создавать на её основе микроструктурированные образцы $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ неполярного X -среза с предсказуемыми распределениями фотовольтаических и фоторефрактивных свойств в приповерхностной области, представляющие значительный интерес для

развития метода фотогальванического пинцета с целью манипулирования микро- и нанообъектами, в том числе имеющими биологическую природу.

2. Результаты проведенных экспериментальных исследований, теоретического анализа и численного моделирования динамики формирования поля пространственного заряда фоторефрактивных микроструктур (решеток) над поверхностью пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ неполярного X -среза при засветке картиной интерференции с контрастом $m \approx 1$, создаваемой лазерными пучками с длиной волны 532 нм, наряду с экспериментальной демонстрацией агрегирования на поверхности таких образцов микро- и наночастиц, могут быть основой для создания экспериментальных образцов фотовольтаических пинцетов, использующих коммерчески доступные пластины конгруэнтного ниобата лития.

3. Разработанные диодный узел и установка для наблюдения термически индуцированной эмиссии электронов в циклах нагрева и охлаждения монокристаллических образцов полярного Z -среза LiNbO_3 цилиндрической формы при атмосферном давлении, а также результаты её экспериментальной реализации, демонстрируют возможность их использования для исследования динамики пироэлектрической генерации электронных пучков наносекундной длительности.

4. Полученные в диссертационной работе при исследовании пироэлектрической генерации электронных пучков экспериментальные результаты, развитые подходы и разработанные методы могут быть основой для реализации нового поколения компактных твердотельных импульсных источников электронов и рентгеновского излучения, использующих термическое воздействие на образцы полярных срезов одноосных сегнетоэлектрических кристаллов, таких как ниобат и танталат лития.

Внедрение результатов работы

Результаты диссертационной работы использованы в следующих научно-исследовательских работах:

– проект № 2.1.1/9701 «Эффекты нелинейного пространственного и спектрального преобразования световых полей в квазирегулярных

дифракционных, волноводно-оптических и доменных структурах на основе фотополимерных материалов, электрооптических и сегнетоэлектрических кристаллов» (проект по аналитической ведомственной целевой программе «Развитие научного потенциала высшей школы (2009–2010 годы)»);

– «Стабильные периодические и периодически-поляризованные структуры, фотонные решетки и сверхрешетки в кристаллах, фотополимерных композициях и оптических волноводах на их основе», выполненный в рамках федеральной целевой программы «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2010-2014 годы, государственный контракт от 22 марта 2010 г. № 02.740.11.0553;

– «Взаимодействия и самовоздействие световых пучков в фоторефрактивных кристаллах, фотополимерных нанокомпозитных материалах, волноводных периодически поляризованных структурах на ниобате лития, фотонных решетках и сверхрешетках в электрооптических и лазерных кристаллах, для обеспечения высокочувствительных адаптивных интерферометрических измерений и реализации волноводных нелинейно-оптических и лазерных компонентов», по государственному заданию Министерства образования и науки РФ на оказание услуг (выполнения работ) 01.01.2012-31.12.2014;

– «Анализ закономерностей взаимодействия световых пучков на динамических голограммах в кубических фоторефрактивных кристаллах и волноводных периодически поляризованных структурах на ниобате лития для обеспечения высокочувствительных адаптивных интерферометрических измерений», международный проект, выполняемый по гранту РФФИ-БРФФ № 12-02-90038-Бел_a (2012-2013 годы);

– программа «У.М.Н.И.К.» Фонда содействия развитию малых форм предприятий в научно-технической сфере, тема проекта «Разработка оптически управляемого малогабаритного источника рентгеновского излучения», 2014 г.;

– научно-исследовательская работа № 2491 «Исследование физических явлений в фоторефрактивных кристаллах, фотополимерных нанокомпозитных материалах, фотонных решетках и сверхрешетках в электрооптических

кристаллах, в элементах энергонезависимой памяти, пленках ИТО и диоксида кремния, модифицированного углеродом» – задание № 2014/225 на выполнение государственных работ в сфере «Задание Министерства на оказание услуг (выполнения работ)», 01.01.2012-31.12.2013;

– научно-исследовательская работа «Развитие методов голографической интерферометрии для исследования механизмов нелинейного отклика при двухпучковом взаимодействии в фоточувствительных кристаллах» – Госзадание Министерства науки и высшего образования Российской Федерации на 2017-2019 годы (задание 3.8898.2017/БЧ);

– научно-исследовательская работа «Развитие методов линейной, нелинейной и дискретной дифракции световых полей для исследования параметров деформаций в структурированных микро-, нанослоях и гетероструктурах на основе сегнетоэлектрических функциональных материалов», Грант РФФИ № 16-29-14046_офи_м 2017-2019 г.г.;

– научно-исследовательская работа «Физические аспекты исследований в актуальных направлениях развития плазменной эмиссионной электроники, фотоники, оптического и космического материаловедения», Госзадание Министерства науки и высшего образования Российской Федерации на 2020-2022 годы (задание FEWM-2020-0038/3).

Результаты работы внедрены в учебный процесс на кафедре ЭП ТУСУРа в виде выполнения курсовых и выпускных квалификационных работ студентами, обучающимися по направлениям подготовки «Электроника и микроэлектроника» и «Фотоника и оптоинформатика»; они использовались в ООО «Кристалл Т», а также в процессе прохождения производственной, преддипломной и научно-исследовательской практик студентами кафедры Электронных приборов.

Апробация работы

Основные результаты работы докладывались на следующих конференциях: Российская научная студенческая конференция «Физика твердого тела» ФТТ-2010, ФТТ-2012, ФТТ-2020 (г. Томск); Международная конференция «Фундаментальные проблемы оптики – 2019» (г. Санкт-Петербург); Научная

сессия ТУСУР-2013, 2015, 2016, 2020, Всероссийская научно-техническая конференция студентов, аспирантов и молодых ученых (г. Томск); Всероссийская с международным участием научная конференция «Полифункциональные химические материалы и технологии» (г. Томск, 21–23 ноября, 2013); XI Всероссийский молодежный Самарский конкурс-конференция научных работ по оптике и лазерной физике (г. Самара, 6–9 ноября 2013); XXVIII Школа-симпозиум по голографии и когерентной оптике (г. Нижний Новгород, 22–26 августа 2013 г.); XXXI международная школа-симпозиум по голографии, когерентной оптике и фотонике (г. Екатеринбург, 30 сентября – 4 октября 2019); V Международная научно-практическая конференция «Актуальные проблемы радиофизики «АПР-2013», (г. Томск); International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects «EFRE 2014, 2018, 2020» (г. Томск); XIII Международная научно-практическая конференция «Электронные средства и системы управления 2017» (г. Томск, 2017); VI Международная конференция «Фотоника и информационная оптика» (г. Москва, 1–3 февраля 2017 г.); XIV Международная научно-техническая конференция «Актуальные проблемы электронного приборостроения (АПЭП 2018)» (г. Новосибирск, 2018); XVII Всероссийская школа-семинар «Волновые явления в неоднородных средах» имени А.П. Сухорукова («Волны-2020») (г. Москва, 23–28 августа 2020 г.).

Публикации

Основные результаты диссертации изложены в 29 публикациях: 8 публикаций – в журналах из перечня ВАК, из них 5 публикаций в журналах, индексируемых в базах Scopus и/или Web of Science; 2 статьи – в сборниках международных конференций, индексируемых в базах Web of Science и/или Scopus; 19 публикаций – в сборниках научных трудов и материалов научных и научно-практических конференций.

Личный вклад автора

В диссертации использованы только те результаты, в получении которых автору принадлежит определяющая роль. Опубликованные работы написаны в соавторстве с членами научной группы, а также с А.А. Ельчаниновым,

Б.И. Авдоченко, А.Д. Беспалым и со студентами А.И. Татьянниковым, Н.Н. Смалем и др. Все соавторы указаны в списке основных публикаций по теме диссертации. В совместных работах диссертант принимал определяющее участие в создании экспериментальных установок и разработке их основных узлов; в проведении экспериментов, теоретического анализа и численного моделирования; в обработке полученных результатов и их интерпретации.

Постановка задач исследований осуществлялась научным руководителем.

Структура и объем работы

Диссертационная работа состоит из введения, пяти глав, заключения и списка литературы. Полный объем диссертации – 209 страниц, включая 77 рисунков и 12 таблиц. Нумерация формул и таблиц принята по главам. Список литературы содержит 148 наименований.

ГЛАВА 1 ГЕНЕРАЦИЯ СИЛЬНЫХ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПОЛЕЙ, ОСНОВАННАЯ НА ТЕРМО- И ФОТОИНДУЦИРОВАННЫХ ЯВЛЕНИЯХ В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ, И ЕЁ ИСПОЛЬЗОВАНИЕ В ЭЛЕКТРОННЫХ УСТРОЙСТВАХ

В настоящей главе представлен обзор работ [1–95], посвященных исследованию явлений, связанных с индуцированными в сегнетоэлектрических кристаллах при температурных и световых воздействиях сильными электрическими полями и с использованием последних для генерации электронных пучков с энергией до 100 кэВ, рентгеновского и нейтронного излучения, а также для реализации устройств оптически управляемого манипулирования микрочастицами.

1.1 Сегнетоэлектрики

1.1.1 Свойства сегнетоэлектриков

В соответствии с одним из определений [31], сегнетоэлектрики – это диэлектрические кристаллы, имеющие в некоторой области температур спонтанную поляризацию, направление которой может быть изменено внешним электрическим полем. Сегнетоэлектрические материалы обладают рядом сопутствующих свойств (наличием фазового перехода, разбиением кристалла на области с различным направлением спонтанной поляризации – домены и т.д.) [31–37, 75–78]. Сегнетоэлектрические кристаллы характеризуются многообразием структурных типов и химического состава, что свидетельствует о разнообразии молекулярных механизмов возникновения спонтанной поляризации.

Следствием существования областей спонтанной поляризации в сегнетоэлектриках является наличие у них свойств, аналогичных свойствам ферромагнетиков: большие значения диэлектрической проницаемости, характерная кривая зависимости диэлектрической проницаемости от температуры

с резким скачком в точке Кюри и гистерезис в зависимости электрической индукции и поляризованности сегнетоэлектрика от напряженности поля в области существования полярной фазы [31–35, 75–78]. Изменение свойств при переходе через точку Кюри происходит вследствие изменения кристаллической структуры сегнетоэлектрика.

К фундаментальным особенностям сегнетоэлектриков относится их способность в полярной фазе (ниже точки Кюри) разбиваться на большое число крошечных областей с постоянной, возникающей самопроизвольно электрической поляризацией, называемых доменами [31–36, 76–78, 81, 83]. Однако при обычных условиях, при отсутствии процедуры монодоменизации, направления поляризации в отдельных доменах различны, и поэтому во всем образце дипольные моменты доменов компенсируют друг друга и суммарная поляризация в таком полидоменном материале равна нулю. Образец становится поляризованным (монодоменным) лишь после того, как внешнее воздействие электрического поля «выстроит» домены в определенном направлении. В полидоменном кристалле домены отделены друг от друга переходными областями (доменными стенками), в которых электрические дипольные моменты изменяют свое направление, характерное для одного домена, на направление в другом [31–36, 77, 78, 81].

Классифицировать сегнетоэлектрики можно по разным признакам [31, 34, 35]. Наиболее распространена классификация сегнетоэлектриков в соответствии со структурой и связанным с ней механизмом возникновения спонтанной поляризации при фазовом переходе [32, 75, 78, 80]. По этому признаку они подразделяются на сегнетоэлектрики типа «смещения», у которых переход в сегнетоэлектрическую фазу связан со смещением ионов, и сегнетоэлектрики типа «порядок-беспорядок», у которых при переходе в сегнетоэлектрическую фазу происходит упорядочение имевшихся в исходной фазе диполей.

Одним из сегнетоэлектрических кристаллов, в настоящее время широкое применяемых в разнообразных технических приложениях, является ниобат лития [2–4, 20–30, 32, 35, 36, 39, 50–67, 72, 81, 83, 94].

1.1.2 Ниобат лития

Электрооптический и нелинейно-оптический фоторефрактивный кристалл ниобата лития (LiNbO_3) – один из наиболее уникальных и широко применяемых в настоящее время сегнетоэлектрических материалов в пьезотехнике, квантовой электронике, опто- и акустоэлектронике [23, 25–28, 30, 36, 42–50, 58–62, 75, 81, 83]. Набор оптических свойств этого материала – величины электрооптических и нелинейно-оптических коэффициентов, чувствительность к голографической записи, возможность получения лазерной генерации с самоудвоением частоты – делают его универсальным для оптических применений, подобно кварцу в акустике. Одной из причин универсальности ниобата лития является возможность управления его свойствами в широких пределах путем варьирования состава (типа легирования или стехиометрии) [23–30, 36, 50, 54, 58–60, 67, 68, 81, 83, 94], что особенно привлекательно для интегральных оптических устройств [24, 26, 30, 36, 50].

Кристалл LiNbO_3 одноосен при всех температурах и имеет единственный структурный фазовый переход (из параэлектрической фазы в сегнетоэлектрическую) второго рода (или близкий ко второму роду) [36, 81, 83]. Однако недостатком ниобата лития с точки зрения исследования механизма сегнетоэлектричества является очень высокая температура Кюри ($1200\text{ }^\circ\text{C}$ у LiNbO_3). Это приводит к необходимости проведения наиболее интересных структурных исследований в неудобной температурной области для LiNbO_3 , который плавится всего лишь на $40\text{ }^\circ\text{C}$ выше своей очень высокой температуры Кюри [32, 36, 81, 83].

Основные параметры и характеристики кристалла ниобата лития, приведенные в работах [32, 36, 81, 83, 144, 145], представлены в таблице 1.1.

Танталат лития (LiTaO_3) является структурным аналогом ниобата лития (LiNbO_3), но отличается существенно более низкой температурой Кюри $T_C = 620\text{ }^\circ\text{C}$ и гораздо меньшим двупреломлением [36, 50, 75, 81]. Вследствие

достаточно большой разницы в температурах плавления ниобата лития ($T = 1250\text{ }^{\circ}\text{C}$) и танталата лития ($T = 1650\text{ }^{\circ}\text{C}$) и большей трудности получения чистого сырья LiTaO_3 , стоящего значительно дороже, чем сырье LiNbO_3 , наибольшее применение получил ниобат лития [75].

Таблица 1.1 – Физико-химические свойства ниобата лития

Химическая формула	LiNbO_3
Точечная группа симметрии	3m
Растворимость	$2,566 \cdot 10^{-4}$ моль/л
Цвет кристалла	от бесцветного до желтоватого
Плотность	$4,61\text{ г/см}^3$
Теплота растворения	6,2 ккал/моль
Энергия кристаллической решетки	228,5 ккал/моль
Теплопроводность	$46\text{ мВт/см} \cdot ^{\circ}\text{C}$
Температура плавления	$1250\text{ }^{\circ}\text{C}$
Температура фазового перехода	$1210\text{ }^{\circ}\text{C}$
Спонтанная поляризация	$50\text{--}80\text{ мкКл/см}^2$
Электрооптические коэффициенты	$r_{33}=30,8 \cdot 10^{-12}\text{ м/В}$ $r_{13}=8,6 \cdot 10^{-12}\text{ м/В}$ $r_{22}=3,4 \cdot 10^{-12}\text{ м/В}$
Удельное сопротивление	$10^{16}\text{--}10^{18}\text{ Ом/см}$
Пироэлектрический коэффициент	$p_3 = -83 \times 10^{-6}\text{ Кл/м}^2 \cdot \text{К}$
Относительная диэлектрическая проницаемость	$\epsilon_{33}^r = 28,1$

Значительный по величине поверхностный заряд, возникающий на перпендикулярных полярной оси гранях сегнетоэлектрических кристаллов ниобата и танталата лития, при изменении их температуры, дает возможность

создавать на их основе миниатюрные генераторы рентгеновского и нейтронного излучения [1–19, 39–44, 47, 49, 61, 71, 72]. Согласно классификации, использованной в работе [71], наблюдается два вида сегнетоэлектрической эмиссии: «слабая» и «сильная». «Слабая» эмиссия электронов происходит от полярной поверхности сегнетоэлектрических материалов в сегнетоэлектрической фазе. Источником электрического поля для «слабого» возбуждения эмиссии служит uncompensated заряд, порожденный отклонением макроскопической спонтанной поляризации от равновесного состояния при пироэлектрическом эффекте, пьезоэлектрическом эффекте, или при переключении поляризации. «Сильная» сегнетоэлектрическая электронная эмиссия вызвана пробоем газоразрядного промежутка между структурированным электродом (полоска, сетка или кольцо) и сегнетоэлектрическим кристаллом в приложенном к нему внешнем поле, с формированием плазмы. Рассмотрим ниже в подразд. 1.2 генерацию сильных электрических полей в кристаллах ниобата и танталата лития при «слабой» сегнетоэлектрической эмиссии.

1.2 Генерация сильных электрических полей в сегнетоэлектрических кристаллах ниобата и танталата лития

1.2.1 Пироэлектрический эффект

Пироэлектрический эффект заключается в изменении спонтанной поляризованности диэлектриков при изменении температуры и как следствие, в возникновении электрических зарядов на поверхности пироэлектриков при их нагревании или охлаждении [31, 32, 37, 38, 78, 82]:

$$\delta\mathbf{P} = \mathbf{P} - \mathbf{P}_c = p\delta T, \quad (1.1)$$

где $\delta\mathbf{P}$ – изменение спонтанной поляризации кристалла; \mathbf{P}_c – поляризация насыщения, p – пироэлектрический коэффициент; и δT – изменение температуры.

В соответствии с известными представлениями [31, 32, 37, 38, 78, 82], кристаллы пьезоэлектрических веществ – сегнетоэлектрики, обладающие спонтанной (самопроизвольной) поляризацией, рассмотренные выше в подразд. 1.1. Спонтанная поляризация диэлектрика P на единицу объема определяется как сумма дипольных моментов в этом объеме. Она численно равна поверхностной плотности зарядов на противоположных гранях кристалла, нормальных к направлению P . Если кристалл достаточно долго находится при постоянной температуре, то избыточные заряды на его поверхности компенсируются из-за собственной проводимости кристалла и из-за взаимодействия с заряженными ионами воздуха, и кристалл в целом не обнаруживает электрической поляризации. Если же температура всего кристалла однородно изменяется, из-за анизотропии меняются расстояния и углы между частицами, меняется существующая внутри кристалла спонтанная поляризация, смещаются электрические заряды диполей и в кристалле возникает постоянная поляризация вдоль определенного направления, называемого электрической осью.

В 1974 году В. Rosenblum, Р. Bräunlich и J.P. Carrico опубликовали работу [39] по термостимулированной электронной эмиссии из пьезоэлектрического и сегнетоэлектрического кристалла ниобата лития. При нагреве кристалла со скоростью ~ 20 °C/мин до 100 °C в вакууме $\sim 10^{-6}$ Торр авторы [39] наблюдали электронную эмиссию с плотностью тока $10^{-10} - 10^{-9}$ А/см². В 1974 году был опубликован патент [40] «Электронный и рентгеновский генератор». В 1992 году Brownridge J.D. опубликовал работу [41], в которой была продемонстрирована генерация рентгеновского излучения на основе электронной эмиссии из пьезоэлектрического кристалла. Располагая золотую фольгу близко к пьезоэлектрическому кристаллу нитрата цезия (CsNO₃), Brownridge J.D. [41] создал миниатюрный рентгеновский генератор, способный генерировать фотоны с энергией ~ 20 кэВ. В 2003 г. компания AMPTEK INC (USA) выпустила первый коммерческий продукт на основе данного явления – миниатюрный пьезоэлектрический генератор рентгеновского излучения [42]. Амплитуда

пироэлектрического напряжения в генераторе, его мощность и поток рентгеновского излучения достигают соответственно 35 кВ, ~300 мВт и 10^8 фотонов в секунду.

В работе [43] подробно описана генерация пироэлектрическими кристаллами сильных электрических полей. Замечено, что некомпенсированный заряд вблизи поверхности кристалла LiNbO_3 является их источником. Изменение температуры кристалла LiNbO_3 от $25\text{ }^\circ\text{C}$ до $100\text{ }^\circ\text{C}$ за очень короткое время по сравнению с временем нейтрализации заряда поляризации приводит к спонтанному изменению поляризации ΔP_c на $0,015\text{ Кл/м}^2$. Напряженность электрического поля на поверхности кристалла будет составлять порядка $|E_0| = 1,35 \times 10^7\text{ В/см}$. Этого достаточно, чтобы ионизировать молекулы газа, которые находятся вблизи поверхности кристалла. Со временем $|E_0|$ снизится до нуля, когда поляризационный заряд компенсируется зарядом из окружающей среды [43].

Кристаллографическая структура LiNbO_3 и LiTaO_3 , описанная, в частности, в работе [43], изображена на рисунке 1.1.

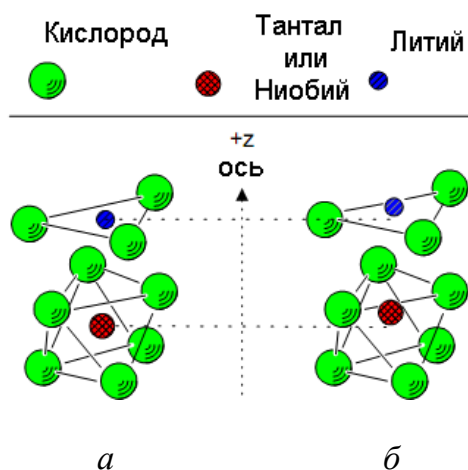


Рисунок 1.1 – Расположение атомов в элементарной ячейке LiNbO_3 и LiTaO_3 [43]:

а – температура кристалла выше точки Кюри;

б – температура кристалла ниже точки Кюри

На рисунке 1.1,*а* показаны позиции атомов Li, Nb и Ta относительно плоскости атомов кислорода в решетке ниобата и танталата лития, соответственно. В данном случае кристалл ниобата или танталата лития находится выше температуры Кюри в парафазе, и ионы Li расположены в плоскости слоя кислорода, а ионы Nb или Ta сосредоточены статично между плоскостями двух слоев атомов кислорода. На рисунке 1.1,*б* показано положение ионов Li, Nb или Ta в кристаллах LiNbO_3 или LiTaO_3 после их охлаждения до температуры ниже температуры Кюри в сегнетоэлектрической фазе: здесь ион Li сдвинулся из плоскости атомов кислорода в направлении $+Z$ вдоль полярной оси кристалла. Кроме того, атомы Nb (или Ta) отошли от центра двух кислородных слоев также в направлении $+Z$ вдоль полярной оси кристалла. Это движение вызвано понижением температуры. Смещение атомов Nb (Ta) относительно атомов кислорода приводит к возникновению спонтанной поляризации. С понижением температуры положительная поверхность ($+Z$) кристалла становится положительно заряженной, а отрицательная поверхность ($-Z$) кристалла становится отрицательно заряженной. Если температура повышается, то поляризация уменьшается и атомы Li, Nb (или Ta) вернуться к своему исходному положению, когда кристалл находился в параэлектрической фазе. Заряд, который появляется на противоположных концах этих кристаллов, называется «поляризационным зарядом» и находится на поверхности кристалла. Как отмечено в работе [43], при этом заряд не покидает поверхность кристалла и отсутствует миграция заряда через кристалл, пока его температура ниже ~ 200 °C. Выше 200 °C сопротивление кристалла становится достаточно низким, что способствует миграции заряда через кристалл. Отсутствие миграции заряда через кристаллы LiNbO_3 и LiTaO_3 является ключевым свойством, которое делает эти кристаллы хорошими электронными и ионными ускорителями при температурах ниже 200 °C и выше температуры насыщения поляризации, т.е. температуры, ниже которой поляризация не изменяется с температурой [43].

В случае, когда кристаллы LiNbO_3 и LiTaO_3 помещены в вакуум или в среду с пониженным давлением, напряженность генерируемого электрического поля определяется давлением газа вокруг кристалла, изменением температуры и временем, прошедшим после изменения температуры [43]. Если давление газа высокое (1 атмосфера), то поляризационный заряд будет нейтрализован почти так же быстро, как он появится на поверхности кристалла. С другой стороны, если давление газа низкое ($<10^{-6}$ торр), то газа будет недостаточно, чтобы обеспечить нейтрализацию заряда со скоростью, равной скорости генерации поляризационного заряда. Следовательно, такой нескомпенсированный заряд появится на поверхности кристалла (рисунок 1.2).



Рисунок 1.2 – Пироэлектрический кристалл в вакууме после изменения температуры [43]

Как отмечалось авторами [43], когда температура кристалла стабильна, поляризационный заряд на его поверхности будет компенсироваться со скоростью, определяемой в первую очередь числом молекул газа в вакууме вокруг кристалла и температурой газа. Фактически, скорость нейтрализации определяется скоростью, при которой молекулы газа случайным образом подходят достаточно близко к поверхности кристалла, чтобы быть ионизированными электрическим полем на поверхности кристалла. Если поверхность отрицательно заряжена, то положительный ион удерживается на поверхности кристалла, а электрон ускоряется. Если поверхность положительна, то электрон удерживается, а ион ускоряется от нее. Типичные энергетические

спектры таких ускоренных электронов и положительных ионов, представленные в работе [43], показаны на рисунках 1.3 и 1.4.

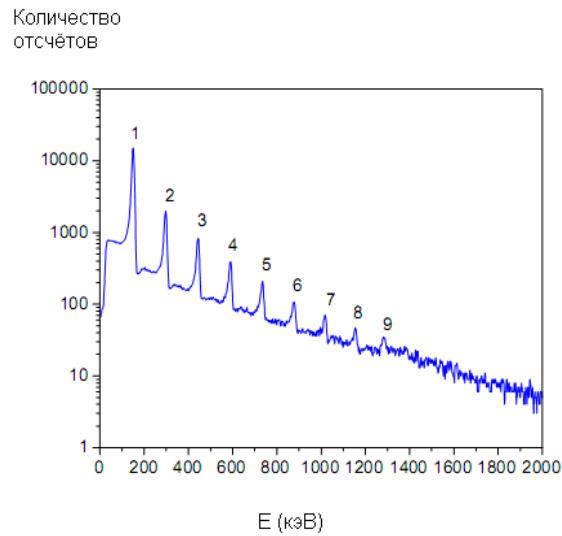


Рисунок 1.3 – Электронный спектр при охлаждении кристалла на 40 °С, регистрируемый за ~10 с [43]

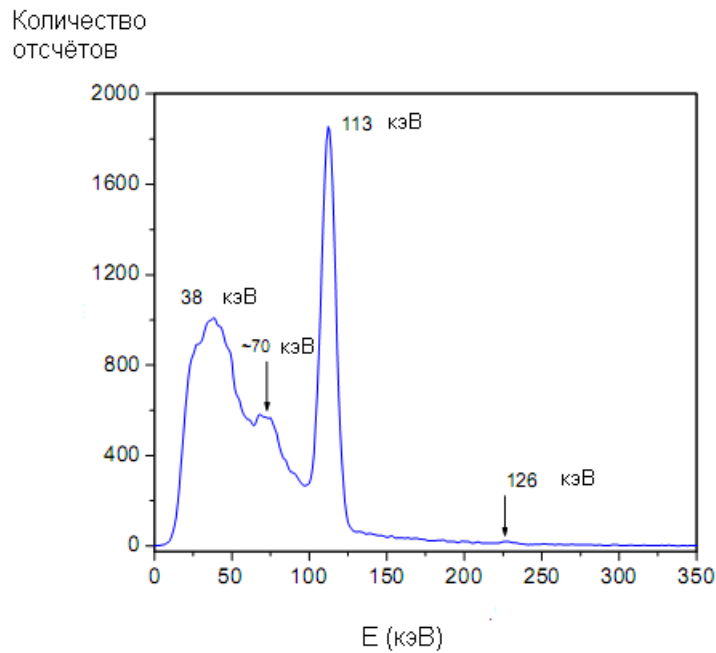


Рисунок 1.4 – Спектр положительных ионов в режиме охлаждения на 53 °С при давлении остаточного газа CO_2 2 мТорр, ускоряемых от поверхности +Z кристалла [43]

В выводах авторы [43] утверждают об описании ими новых явлений, которые могут наблюдаться, когда кристаллы LiNbO_3 и LiTaO_3 нагреваются и

охлаждаются в разреженном газе, среди которых нужно отметить следующие важные эффекты.

1. Самофокусировка электронного пучка, ускоряющегося как в случае движения от поверхности кристалла, так и к ней.

2. Самофокусировка пучка положительных ионов, ускоряющегося от поверхности кристалла.

3. Ионизация посредством туннелирования в сильном электрическом поле электронов от молекул окружающего кристалл остаточного газа, являющаяся источником как электронов, так и положительных ионов.

4. Увеличение энергии электронов в пучке при оптимизации давления газа в камере, где находится кристалл.

5. Отсутствие увеличения энергии ионов при повышении давления газа.

6. Близкое к моноэнергетическому ускорение электронов вблизи поверхности кристалла.

7. При низком давлении в вакуумной камере ($\sim 10^{-6}$ Торр) ускорение электронов продолжается в течение 15 дней после завершения нагрева кристалла до 180 °С и выключения нагревателя.

8. Генерация характеристического рентгеновского излучения элементов с верхней границей атомного номера Z , соответствующей Bi .

Авторы [43] также утверждают, что нагревание и охлаждение пироэлектрических кристаллов $LiNbO_3$ и $LiTaO_3$ цилиндрической формы при определенных условиях может быть использовано для получения относительно бесфоновых спектров характеристического рентгеновского излучения К-серии для элементов с высокими значениями Z .

Граничная энергия квантов рентгеновского излучения определяется максимальной энергией ускоренных в генераторе электронов, вызывающих в мишени тормозное излучение, зависящей от разности потенциалов на ускоряющем промежутке [10]. В работе [10] рассмотрены 2 схемы пироэлектрического ускорителя электронов, однокристалльная, показанная на

рисунке 1.5, и с двумя сегнетоэлектрическими кристаллами. В схеме с одним кристаллом полагается, что одна его поверхность заземлена, а другая свободна и отделена от мишени вакуумным промежутком. В расчетах авторы полагают, что нагревание (или охлаждение) кристалла на температуру ΔT приводит к образованию на поверхности В некомпенсированного заряда

$$Q_B = Ap\Delta T, \quad (1.2)$$

где A – площадь грани В. Поскольку металлическая мишень С заземлена, авторы [10] полагают, что данный заряд обеспечивает однородное электрическое поле в параллельно соединенных емкостях кристалла C_{cr} и вакуумного промежутка C_{gap} , с суммарной емкостью

$$C_{eq} = C_{cr} + C_{gap}, \quad (1.3)$$

где емкости определяются известными соотношениями для плоского конденсатора

$$C_{cr} = \frac{\epsilon_0 \epsilon_{cr} A}{L_1}, \quad C_{gap} = \frac{\epsilon_0 \epsilon_{gap} A}{L_G}, \quad (1.4)$$

где ϵ_{cr} и ϵ_{gap} – относительные диэлектрические проницаемости кристалла и вакуумного промежутка; ϵ_0 – диэлектрическая постоянная; L_1 – толщина кристалла; L_G – расстояние между кристаллом и мишенью.



Рисунок 1.5 – Схема пьезоэлектрического генератора с одним кристаллом [10]

Использование формул (1.2)–(1.4) позволяет определить разность потенциалов между поверхностью В кристалла и мишенью и напряженность электрического поля в вакуумном промежутке в следующем виде [10]:

$$V = \frac{Q_B}{C_{eq}} = \frac{Ap\Delta T}{\frac{\varepsilon_0\varepsilon_{cr}A}{L_1} + \frac{\varepsilon_0\varepsilon_{gap}A}{L_G}} = \frac{p\Delta T}{\varepsilon_0 \left(\frac{\varepsilon_{cr}}{L_1} + \frac{\varepsilon_{gap}}{L_G} \right)}, \quad (1.5)$$

$$E_G = \frac{V}{L_G} = \frac{p\Delta T}{\varepsilon_0 \left(L_G\varepsilon_{cr} / L_1 + \varepsilon_{gap} \right)}. \quad (1.6)$$

Аналогичный подход к описанию электрического поля в однокристалльной схеме использовался также в работах [17, 44, 47, 71].

Из соотношения (1.5) следует, что разность потенциалов V должна линейно зависеть от толщины кристалла, а зависимость V от его площади должна отсутствовать. Однако авторы [44] обнаружили, что это противоречит их экспериментальным результатам: использование кристаллов с большей площадью поверхности приводило к существенному увеличению граничной энергии квантов рентгеновского излучения и значительному увеличению его интегрального выхода. В работе [44] утверждается, что одной из причин несоответствия наблюдаемых результатов с предсказываемыми данной моделью может быть влияние краевых эффектов на величину разности потенциалов V .

Таким образом, используемая в работах [10, 17, 44, 47, 71] модель для однокристалльной схемы, основанная на приближениях заданного некомпенсированного поверхностного заряда и однородного распределения электрического поля, соответствующего параллельному соединению двух плоских конденсаторов, нуждается в уточнении.

Временные зависимости эмиссионного тока и рентгеновского излучения для ниобата лития при пирозлектрическом эффекте изучались, например, в работах [7, 39, 43, 66]. В работе [7] исследовалась кинетика термостимулированной эмиссии электронов из монокристалла ниобата лития Z -ориентации с толщиной 1 мм и площадью 20 мм² в вакууме при давлении $6,5 \cdot 10^{-3}$ Па, в интервале

температур от комнатных до 200 °С в режимах линейного нагрева и стабилизации температуры. Авторами [7] установлено, что в режиме линейного нагрева со скоростью 3 К/мин эмиссионный ток появляется практически сразу с возникновением изменения спонтанной поляризации, и прекращается при температуре 90 °С. В этом случае величина тока не превышает $3 \cdot 10^3$ электронов/с. При исследовании релаксации эмиссионного тока ими задавалась зависимость температуры образца от времени, показанная на рисунке 1.6,б, включающая ее стабилизацию при различных значениях в диапазоне 45–85 °С. При изменении температуры эмиссионный ток быстро возрастал до максимальных значений (рисунок 1.6).

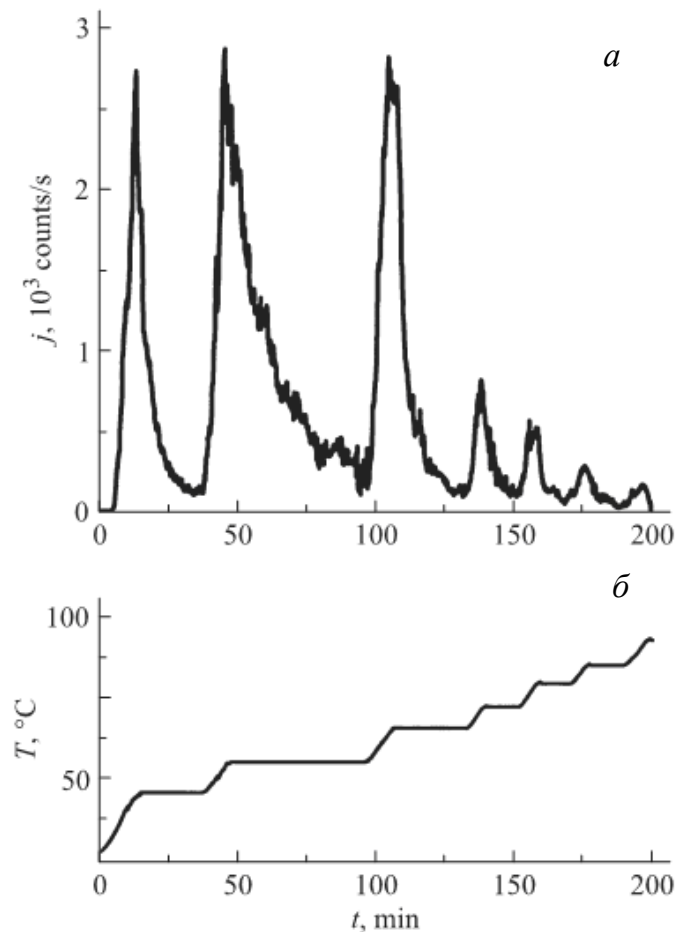


Рисунок 1.6 – Релаксация тока термостимулированной эмиссии электронов в кристалле ниобата лития: *а* – зависимость эмиссионного тока от времени;

б – изменение со временем температуры образца [7]

Из приведенных на рисунке 1.6,*a* зависимостей можно оценить полное количество заряда, эмитируемого с поверхности исследованного образца ниобата лития единичной площади в течение второго этапа нагрева и выдержки при температуре ~ 55 °С (за время около 4800 с), как $0,5$ нКл/м².

Авторами [68] были проведены исследования эмиссионного тока при пироэлектрическом механизме эмиссии с $-Z$ поверхности образца ниобата лития конгруэнтного состава, имеющего толщину 1 мм. Кристалл, помещенный в высоковакуумную камеру, обеспечивающую давление менее чем 10^{-6} Торр, нагревался со скоростью 10 °С/мин до температуры 120 °С, а затем следовал этап естественного охлаждения в течение 45 мин. Для детектирования тока эмиссии использовался кремниевый фотодиод с p - n -переходом AXUV-100, с токовой чувствительностью $0,2$ А/Вт для электронов с энергией от 1 до 40 кэВ, и электрометр модели 6514 фирмы Keithely Instruments. Для изучения пространственного распределения электронного тока применялся электронный резист ZEP-520 фирмы Nippon Zeon Co., Ltd. с чувствительностью ~ 1 мкК/см². Зазор между поверхностью кристалла и детектором электронов варьировался от 90 мкм до 5 мм с использованием распорок из корунда.

Полученные авторами [68] временные зависимости эмиссионного тока при используемых ими величинах зазора между поверхностью кристалла и детектором электронов и температурных циклах «нагрев – естественное охлаждение» показаны на рисунке 1.7. Они делают вывод, что при нагреве кристалла не наблюдалось значительного эмиссионного тока, в то время как при охлаждении для малого зазора (1 мм) в течение длительного промежутка времени проявлялись вспышки высокого эмиссионного тока, по сравнению с его значениями для других, более широких зазоров. При больших зазорах (выше 2 мм) для цикла охлаждения эмиссионный ток возрастал и затем стабилизировался, демонстрируя быстрый слабый колебательный ритм до достижения комнатной температуры. Как следует из рисунка 1.7, при величине зазора в $2,5$ мм ток возрастал от нуля до значений около 80 нА за время, составляющее более 30 мин. Такое различие в поведении эмиссионного тока, по мнению авторов [68], связано

с тем, что при малых зазорах пироэлектрическая эмиссия определяется высокой напряженностью электрического поля, приводящей к высокой степени ионизации, которая обуславливает нестационарное развитие поверхностного разряда в результате пробоя плазмы. При большом зазоре поле ионизации поддерживается плавным и непрерывным образованием плазмы, которая обеспечивает стабильный ток эмиссии, продолжающийся до достижения комнатной температуры.

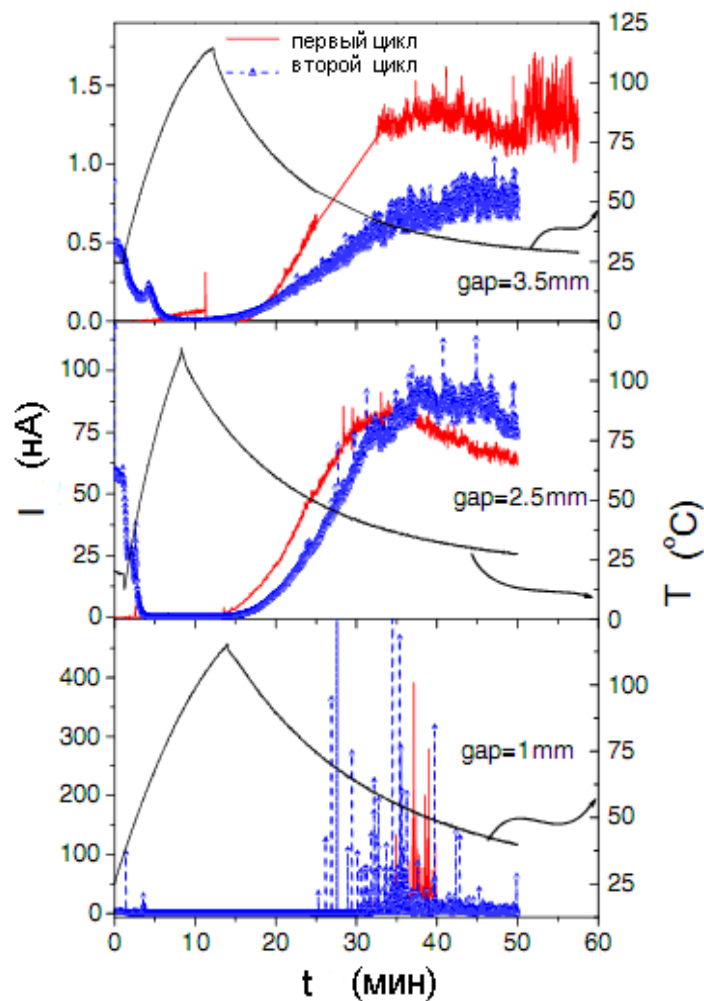


Рисунок 1.7 – Временная эволюция тока (I) и температуры (T) при значениях вакуумного промежутка 1 мм, 2,5 мм и 3,5 мм [68]

Следует также отметить, что наблюдаемые в [68] максимальные значения тока эмиссии (см. рисунок 1.7) при зазорах 2,5 мм и 3,5 мм не превышают 100 и 1,5 нА, соответственно, причем в этих случаях его постоянная составляющая плавно увеличивается до указанных значений в течение 45 мин. Наблюдаемое при

зазоре 2,5 мм значение флюенса электронов можно оценить, как 0,16 мкКл. Другой временной вид эволюции тока эмиссии, имеющий импульсный характер, демонстрируется на рисунке 1.7 для величины зазора 1 мм, где максимальные значения тока эмиссии могут превышать 400 нА.

Теоретическому моделированию и экспериментальному изучению временной эволюции электрического потенциала, создаваемого между коллектором электронов и цилиндрическим кристаллом LiTaO_3 при его нагреве, посвящена работа [50]. В экспериментах кристалл LiTaO_3 цилиндрической формы с диаметром 30 мм и толщиной 10 мм нагревался от комнатной температуры (22 °С) до 110 °С в течение 20 минут при давлении 10 мТорр. Для подсчета генерируемого поверхностного заряда в течение цикла нагрева использовался коллектор, напрямую контактировавший с $+Z$ поверхностью кристалла. Предусилитель, подключенный к коллектору, генерировал один импульс для каждого электрического заряда величиной 0,72 нКл, создаваемого на поверхности кристалла вследствие нагрева. Эксперименты авторов [50] показали, что общее количество собранных электрических зарядов, создаваемых на поверхности кристалла при нагреве от 22 °С до 110 °С в течение 20 минут составляет 11,1 ($\pm 1\%$) мкКл. Это значение оценено ими, как согласующееся с величиной заряда, определяемой пироэлектрическим эффектом (см. формулу (1.1)). Ими обсуждаются три возможных механизма эмиссии электронов пироэлектрическим кристаллом: (а) термоионная эмиссия, (б) полевая ионизация, (с) автоэлектронная эмиссия электронов. По их мнению, механизм термоионной эмиссии не подтверждается её зависимостью от перепадов температуры, а не от самой температуры. Из измерений энергии эмитированных электронов в вакуумной камере (0,1 мТорр), продемонстрировавших наличие заметных пиков в энергетическом спектре, они сделали вывод, что процесс ионизационной эмиссии не является преобладающим. Кроме того, ионизационная эмиссия чувствительна к изменениям вакуумного давления, однако проведенные эксперименты по его изменениям не выявили заметных вариаций в ионизации.

На основании проведенных авторами [50] измерений поверхностной плотности электрического заряда, составившего около $0,1 \text{ Кл/м}^2$ и предполагающего высокую плотность электронов ($\sim 10^{20}$ частиц/ м^2), ими сделан вывод о возможности рассматривать поверхность кристалла, как проводник. На его основании для расчета тока эмитированных электронов авторы [50] использовали уравнение Фаулера-Нордгейма:

$$i_{\text{emission}} = AU^2 \exp\left(-\frac{B}{U}\right), \quad (1.7)$$

где A и B – константы, зависящие от типа проводника; U – его электрический потенциал. На его основе, из подгонки под экспериментальные данные для зависимости тока эмиссии от времени в цикле нагрева, им удалось определить константы A и B , при которых расчет удовлетворительно описывает временную эволюцию эмиссионного тока для образца LiTaO_3 с диаметром 30 мм (рисунок 1.8). Следует отметить, что максимальное значение этого тока не превышало 0,9 нА.

Для описания временной зависимости электрического потенциала, генерируемого в цикле нагрева на поверхности кристаллов с различной толщиной L_1 , превышающей 100 нВ при значениях $L_1 > 10$ мм и уменьшающегося далее с увеличением толщины кристалла, авторы [50] использовали следующие уравнения:

$$\frac{dU(t)}{dt} = \frac{pA}{\tau C_{eq}} \frac{dT}{dt} - \frac{U(t)}{\tau} - \frac{U(t)}{R_{cr} C_{eq}} - \frac{i_{\text{emission}}(t)}{C_{eq}}, \quad (1.8)$$

$$\tau = 1,25L_1 - 6,8,$$

где τ – задержка при генерации электрического заряда (в секундах для толщины в мм); T – температура заземленной стороны кристалла, а R_{cr} и p – его сопротивление и пирозлектрический коэффициент. Согласно проведенным в [50] по формуле (1.8) расчетам, максимально достижимый потенциал для кристалла LiTaO_3 составляет около 119 кВ, а его зависимость от толщины образца

удовлетворительно согласуется с представленными здесь же экспериментальными данными. Временные зависимости для электрического потенциала на коллекторе, генерируемого пирозлектрическим источником, использующим образец с диаметром 30 мм, также представлены на рисунке 1.8.

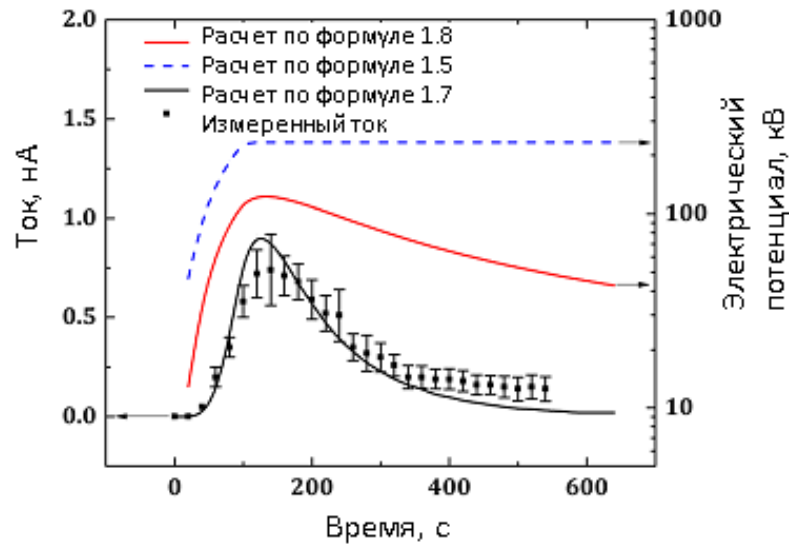


Рисунок 1.8 – Временные зависимости для электрического потенциала на коллекторе, генерируемого пирозлектрическим источником, использующим образец с диаметром 30 мм [50]

Авторы [50] отмечают, что развитая ими динамическая модель способна точнее предсказывать изменение потенциала в зависимости от толщины кристалла и его временную зависимость, по сравнению с формулами, используемыми в работах [10, 46, 47].

Таким образом, развитие во времени процессов формирования электрического потенциала и эмиссии электронов в пирозлектрических системах на основе монокристаллических образцов сегнетоэлектрических кристаллов исследовалось на временных масштабах от десятков секунд до часов. В то же время, как следует из рисунка 1.7, в пирозлектрических источниках электронов ток эмиссии может генерироваться в виде импульсов с длительностью, существенно меньшей, чем 1 с, что представляет значительный интерес для их приложений в импульсных генераторах рентгеновского излучения. Следует также

отметить, что комплексная обобщающая теория пирозлектрических источников электронов, позволяющая объяснить все вышеперечисленные явления, в настоящее время слабо разработана и требует дальнейшего развития.

1.2.2 Пирозлектрические устройства генерации рентгеновского и нейтронного излучения на основе ниобата и танталата лития

В настоящее время активно изучаются возможности применения пирозлектрической генерации сильных электрических полей в кристаллах ниобата и танталата лития, в частности, для создания твердотельных источников электронных пучков, рентгеновского излучения и нейтронов [1–19, 42–50, 62–76, 84, 86].

В учебном пособии [84] кратко описаны миниатюрные генераторы рентгеновского и нейтронного излучения на пирозлектрических кристаллах, рассмотренные в работах [42, 71]. Здесь, в частности, представлены сведения о разработанном и производимом фирмой AMPTEK INC (USA) миниатюрном пирозлектрическом генераторе рентгеновского излучения [42], схема конструкции и внешний вид которого иллюстрируется на рисунке 1.9.

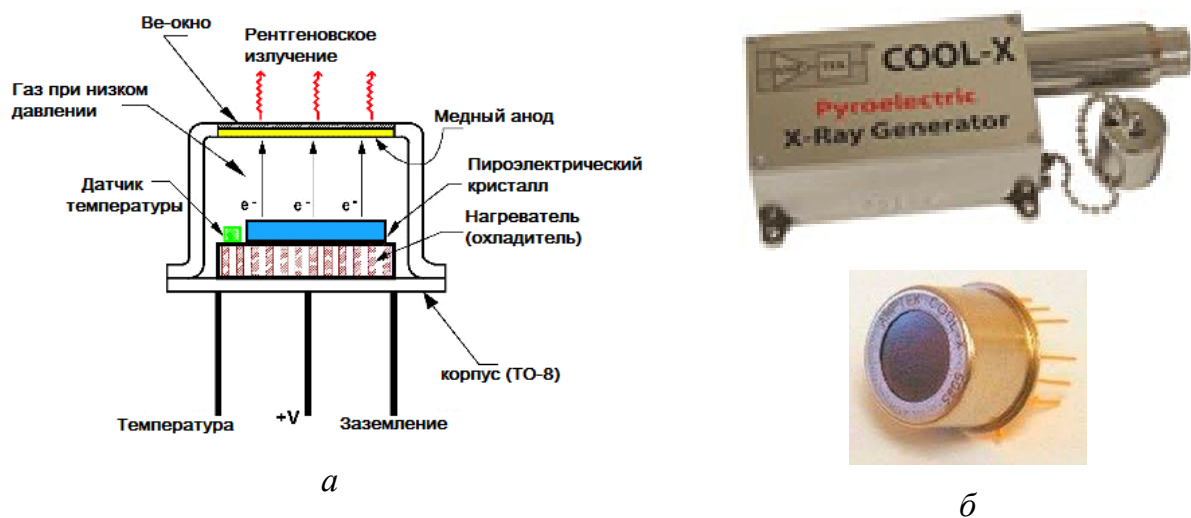


Рисунок 1.9 – Схематический вид конструкции (а) и внешний вид (б) пирозлектрического генератора рентгеновского излучения [42, 84]

Автор [84] обращает внимание на ориентацию используемого пироэлектрического кристалла LiTaO_3 таким образом, чтобы его верхняя поверхность при нагреве заряжалась положительно. Он полагает, что электроны из заполняющей корпус газовой среды, находящейся при низком давлении, ускоряются в направлении поверхности кристалла, и при соударении с ней обеспечивают генерацию характеристического (Ta) и тормозного рентгеновского излучения. При охлаждении кристалла, вследствие изменения знака заряда поверхности на отрицательный, как утверждается в [84], электроны ускоряются в направлении медного анода с нулевым электрическим потенциалом, что также приводит к генерации как характеристического (Cu), так и тормозного рентгеновского излучения.

В [84] также приводятся данные о времени цикла нагрев – охлаждение, составляющем 2–5 минут; о размерах пироэлектрического генератора, имеющих значения 25 мм в диаметре и 10 мм по высоте; амплитуде генерируемого электрического напряжения, потребляемой мощности и потоке рентгеновского излучения, достигающих соответственно 35 кВ, ~300 мВт и 10^8 фотонов в секунду. Данный генератор не содержит внешнего источника высокого напряжения и радиоактивных деталей, его питание может осуществляться от аккумулятора [42]. На рисунке 1.10 представлено рентгенографическое изображение фрагментов мумифицированной полевой мыши, полученное с использованием генератора COOL-X в течение трех циклов нагрев – охлаждение на расстоянии 10 см, демонстрирующее возможность его практического применения.

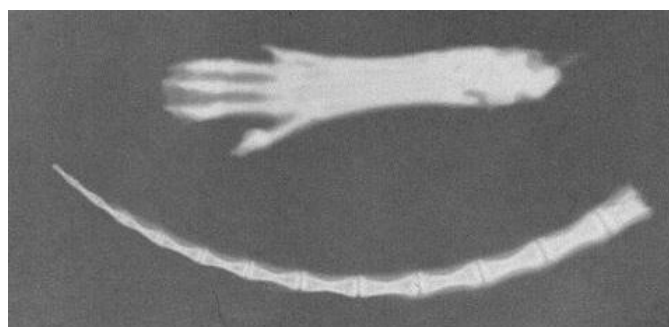


Рисунок 1.10 – Рентгенографическое изображение части мумифицированной полевой мыши, полученное с миниатюрным источником COOL-X [42]

В работе [86] описан плоский панельный источник рентгеновского излучения на основе так называемой МАХ-технологии (МАХ – Microemitter Array X-ray, то есть решетка микроэмиттерных источников рентгеновского излучения). В нём используется массив элементов, каждый из которых содержит термоциклируемый пироэлектрический кристалл, мишень для тормозной генерации рентгеновского излучения и коллиматор, смонтированные на некоторой подложке; при этом поверхность кристалла имеет покрытие в виде металлической пленки. Авторы утверждают, что все эти компоненты могут быть изготовлены в герметичном вакуумном исполнении в виде последовательно расположенных друг над другом слоёв. Внешний вид и внутренняя конструкция панельного источника показана на рисунке 1.11. Следует отметить, что для увеличения напряженности поля, приводящего к эмиссии электронов, авторы [86] предлагают использовать регулярный массив микроштырей конической формы, создаваемых в металлической пленке, нанесенной на пироэлектрический кристалл. Они также приводят некоторые требуемые параметры идеального плоского панельного источника для применений в радиологии, такие как энергия электронов (20–150 кэВ), время экспозиции (10 мс – 2 с), размер поля излучения ($43 \times 43 \text{ см}^2$), эквивалентный ток (0,1 – 10 мА), доза радиации (0,4 – 11 мГр) [86].

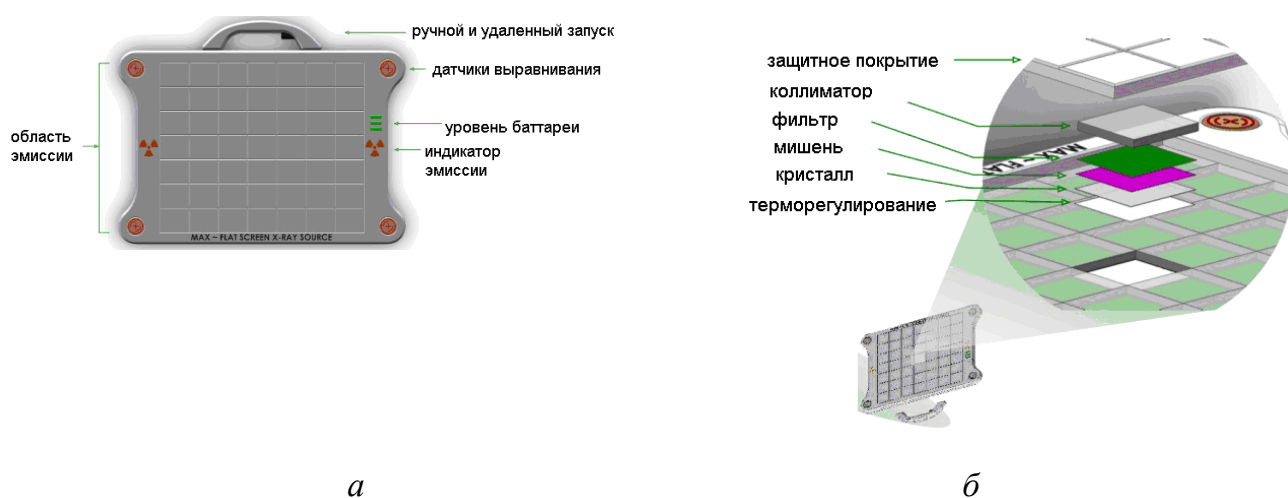


Рисунок 1.11 – Плоский панельный источник рентгеновского излучения на основе технологии МАХ: *а* – внешний вид; *б* – схематическая конструкция отдельного элемента [86]

Результаты разработки источника нейтронного излучения на основе пироэлектрической генерации сильных электрических полей описаны в работе [71]. Её авторы использовали цилиндрический кристалл танталата лития (LiTaO_3) Z-среза, с диаметром 3 см и толщиной 1 см. К открытой поверхности кристалла был прикреплен медный диск (диаметр 2,5 см, толщина 0,5 мм), который позволял заряду стекать на вольфрамовый конический штырь (радиус наконечника 100 нм, длина 2,3 мм). Геометрия штыря была выбрана такой, что напряженность поля на наконечнике составляла ~ 25 ГВ/м, когда потенциал поверхности кристалла достигал значения 80 кВ. Давление в вакуумной камере, заполненной дейтерием, было на уровне 0,7 Па. Кристалл сначала охлаждался до 240 К с помощью жидкого азота, а через 15 секунд включался нагрев со скоростью 12,4 К/мин и продолжительностью 170 секунд. В качестве мишени авторы [71] использовали молибденовый диск, покрытый слоем дейтерированного эрбия ErD_2 . Молекулы дейтерия ускорялись в вакуумной камере в поле ~ 100 кВ по направлению к дейтерированной мишени. При соударении ускоренных ионов с мишенью на ней происходит ядерная реакция $\text{D} + \text{D} \rightarrow {}^3\text{He} (820 \text{ кэВ}) + \text{n}$, при которой генерируются нейтроны n с энергией 2,45 МэВ и интенсивностью в пике потока, достигающей 800 нейтронов в секунду.

Как следует из анализа литературных источников, в настоящее время энергии выходного рентгеновского излучения в вышеописанных генераторах недостаточно для полноценной медицинской диагностики и других приложений, что связано с недостаточной суммарной дозой электронов, излучаемых пироэлектрическими элементами за один цикл нагрев – охлаждение. Таким образом, изучение физических явлений, имеющих место при генерации электронных пучков пироэлектрическими источниками сильных электрических полей, а также оптимизация параметров устройств, основанных на их использовании, является важной задачей.

1.2.3 Фотогальванический эффект

Фотогальванический эффект в сегнетоэлектрических кристаллах ниобата и танталата лития также может приводить к генерации в них сильных электрических полей [27, 35]. Для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ и $\text{LiTaO}_3:\text{Fe}$ в основу модели фотогальванического эффекта положена идея о разделении заряда в результате перезарядки примесных центров Fe^{2+} и Fe^{3+} (такую же роль играют примеси Cu , Mo , Cr , Mn и др.) [27–29, 35, 51, 58]. Под действием света электрон от центра Fe^{2+} переходит к ближайшему иону Nb^{5+} , движется по поляронному механизму и захватывается глубокой ловушкой, в качестве которой выступает ион Fe^{3+} . Ион Fe^{2+} выступает как донор, а ион Fe^{3+} – как акцептор. Таким образом, ион железа, или другой фотоактивной примеси, может выполнять роль донорно-акцепторного центра.

Фотоиндуцированное перераспределение зарядов по таким центрам, сопровождающееся формированием электрического поля с пространственной зависимостью, определяемой распределением интенсивности света, приводит к фоторефрактивному эффекту, широко используемому в динамической голографии [25–30, 35, 36, 57–61, 82, 84], а также открывает возможности для создания компактных кристаллических ускорителей для генерации электронных пучков и рентгеновского излучения [4, 48, 62–64] и оптически управляемых манипуляторов микро- и наночастицами (оптических пинцетов) [20–24, 56, 94]. Достижимые значения напряженности электрического поля при фотовольтаическом механизме его формирования могут варьироваться в широких пределах путем легирования ниобата лития фоторефрактивными и нефоторефрактивными примесями [27–29, 51, 58, 84]. Наибольшие значения фотовольтаических полей (50–100 кВ/см) наблюдаются при легировании монокристаллов LiNbO_3 ионами Fe и Cu [27–29, 51, 84], значительно увеличивающими его фоторефрактивную чувствительность, определяемую через отношение скорости роста амплитуды модуляции показателя преломления фоторефрактивной голограммой Δn на начальном участке её формирования к

амплитуде модуляции интенсивности [25]. Как показано в работе [29], в случае $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ пригодные для записи фоторефрактивных голограмм образцы с толщиной около 1 мм с общей концентрацией меди от $5,3 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$ до $1,45 \cdot 10^{26} \text{ м}^{-3}$ могут быть получены методом диффузионного легирования.

Диффузионное легирование позволяет управлять фотовольтаическими и фотопроводящими параметрами образцов в значительных пределах [26, 29], что делает возможным оптимизацию условий оптически управляемого формирования в них сильных электрических полей с целью реализации на их основе компактных кристаллических ускорителей для генерации электронных пучков и рентгеновского излучения и оптически управляемых манипуляторов микро- и наночастицами.

В работе [62] было показано, что электрические поля, генерируемые в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Ce}$ за счет фотогальванического эффекта при его засветке лазерным пучком с длиной волны $\lambda=470 \text{ нм}$ и мощностью 300 мВт, приводят к импульсной эмиссии электронов. Схема используемой для экспериментов установки изображена на рисунке 1.12. Лазерный луч вводился в систему через оптически прозрачное окно. После засветки в течение 10–20 минут кристалл заряжался за счет фотогальванического тока, и лазерный луч выключался.

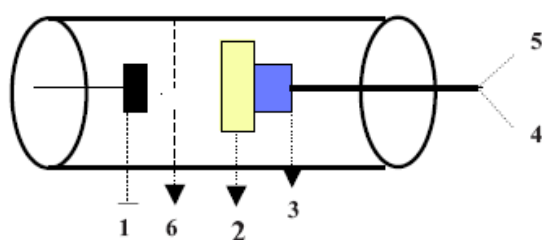


Рисунок 1.12 – Экспериментальная установка для генерации электронов:

- 1 – детектор электронов/рентгеновского излучения; 2 – кристалл; 3 – нагреватель;
4 – измеритель температуры; 5 – источник питания; 6 – Cu-KCl/ZnS экран [62]

Яркие вспышки, визуализируемые на флуоресцентном экране ZnS (рисунок 1.13,а), наблюдались, когда давление в вакуумной камере увеличивали с 1 до 10 торр. Полученный в работе [62] рентгеновский спектр, соответствующий

флюоресценции атомов цинка, входящих в состав экрана ZnS, показан на рисунке 1.13,б.

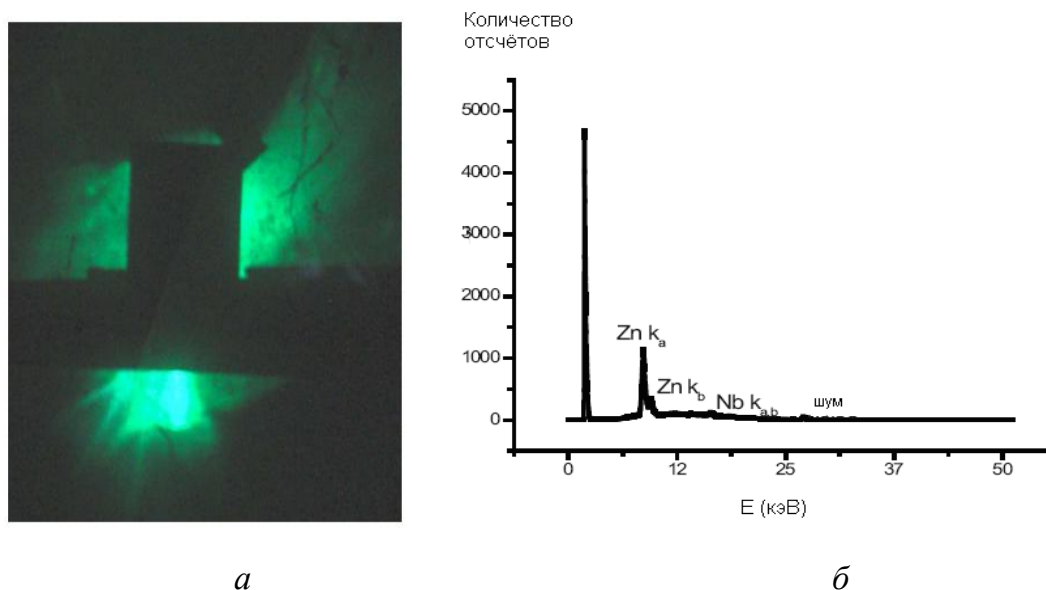


Рисунок 1.13 – Генерация электронов (а) и спектр рентгеновского излучения (б), наблюдаемые во время накопления заряда на кристалле, вызванного фотогальваническим эффектом [62]

Как отмечено в [62], фотогальванические ускорители могут иметь преимущество по сравнению с пироэлектрическими аналогами, благодаря несвязанным с нагревом методом зарядки кристалла и возможностью использования устойчивого состояния и импульсного режима работы.

Авторами [63] продемонстрирована электронная эмиссия в виде последовательности импульсов с длительностью 1–10 мкс, синхронных с наблюдаемыми в исследуемом случае хаотическими пульсациями картин обратного фотоиндуцированного рассеяния света при засветке Z-среза кристалла LiNbO₃:Fe фокусированным лазерным пучком с $\lambda=514$ нм. В статье [64] продемонстрирована эмиссия электронов при облучении Z-среза кристалла LiNbO₃:Fe твердотельным лазером с непрерывной диодной накачкой ($\lambda=532$ нм и $P = 10$ мВ), вызывающим фотогальванический ток. Полярные концы кристалла при этом становились электрически заряженными и создавали самофокусирующиеся электронные пучки, которые отображались на люминесцентном экране из ZnS.

Значительный интерес к генерируемым в приповерхностных областях кристаллов ниобата и танталата лития за счет фотогальванического эффекта пространственно-неоднородным полям связан с задачей создания оптически управляемых манипуляторов микро- и наночастицами (оптических пинцетов) [20–24, 52–56, 94]. Теоретическому анализу структуры упругих и электрических полей, возникающих вблизи границы X -среза кристалла ниобата лития при формировании фоторефрактивной решетки с волновым вектором \vec{K} , параллельным оси симметрии третьего порядка, за счет фотогальванического эффекта, посвящена работа [30].

Здесь проведен анализ таких полей для кристалла симметрии $3m$, в котором сформирована фоторефрактивная решетка пропускающего типа (рисунок 1.14). Считалось, что вектор \vec{K} решетки ориентирован вдоль полярной оси z кристалла, а на его грани $z = 0$ и $z = d$ нанесены электроды 1 и 2, закороченные между собой. Возникающие в образце благодаря пьезоэффекту упругие поля приводят к формированию поверхностного рельефа на границе $x = 0$ и вносят дополнительный фотоупругий вклад в модуляцию оптических свойств среды.

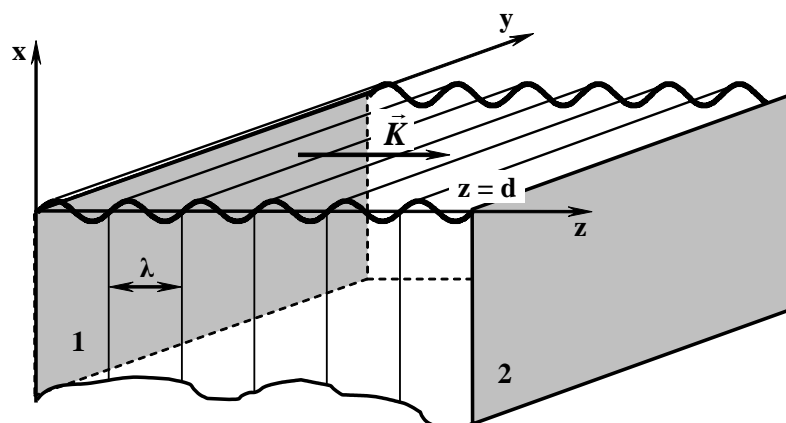


Рисунок 1.14 – Фоторефрактивная решетка в X -срезе кристалла ниобата лития, электрически закороченного вдоль оси z [30]

При анализе распределения электрических и упругих полей фоторефрактивной решетки в рассматриваемом образце авторы пренебрегли эффектами самодифракции и представили распределение интенсивности записывающего света в виде интерференционной картины

$$I(z) = I_0 [1 + m \cos(Kz)], \quad (1.9)$$

с контрастом m , средней интенсивностью I_0 и пространственным периодом $\Lambda = 2\pi / K$, где $K = |\mathbf{K}|$. При отсутствии насыщения ловушек концентрация фотовозбужденных электронов линейно связана с интенсивностью света

$$n(z) = S(N_D - N_A)\tau_R I(z), \quad (1.10)$$

где S и N_D – сечение фотоионизации и концентрация донорных центров; N_A – концентрация компенсирующих акцепторов; τ_R – время рекомбинации электронов. Пренебрегая вкладом диффузии в процессы перераспределения зарядов, авторы [30] приняли во внимание составляющую плотности фотогальванического тока вдоль полярной оси

$$\delta^{ph}(z) = \mathbf{z}^0 \beta I(z), \quad (1.11)$$

где \mathbf{z}^0 – орт кристаллофизической системы координат. Фотогальваническая постоянная кристалла определяется через компоненты фотогальванического тензора как $\beta = \beta_{31}$ и $\beta = \beta_{33}$ при обыкновенной и необыкновенной поляризации взаимодействующих световых волн, соответственно.

Для нахождения распределения электростатического поля фоторефрактивной решетки, устанавливающегося в стационарном режиме, использовалось уравнение непрерывности

$$\text{div} [e n \hat{\mu} \cdot \text{grad} \varphi - \delta^{ph}] = 0, \quad (1.12)$$

где $\varphi(x, z)$ – электростатический потенциал; $\hat{\mu}$ – тензор подвижности электронов и e – элементарный электрический заряд.

Отмечено, что при короткозамкнутых электродах 1 и 2 ($\varphi_1 = \varphi_2 = 0$) и однородном освещении ($m = 0$) электрическое поле в кристалле отсутствует ($\varphi(x, z) \equiv 0$). Далее авторы [30] воспользовались приближением малых контрастов ($m \ll 1$) и приняли для простоты, что размер кристалла вдоль оси z

удовлетворяет условию $Kd = p\pi$, где $p \gg 1$ – целое число. Для этого случая они приняли во внимание только первую пространственную гармонику решетки и предложили отыскивать распределение электрического потенциала в виде функции

$$\varphi(x, z) = \varphi_1 \sin(Kz), \quad (1.13)$$

автоматически удовлетворяющей граничным условиям при $z = 0$ и $z = d$.

Подставляя в уравнение (1.12) $\varphi(x, z)$ с учетом соотношений (1.9)–(1.11), авторы [30] получили уравнение, описывающее в линейном приближении распределение амплитуды первой гармоники потенциала фоторефрактивной решетки в кристалле в следующем виде:

$$\frac{\partial^2 \varphi_1}{\partial x^2} - \frac{\mu_3}{\mu_1} K^2 \varphi_1 = -Km \frac{\beta}{e\mu_1 S (N_D - N_A) \tau_R}, \quad (1.14)$$

где μ_1 и μ_3 – подвижности электронов вдоль осей x и z .

Решение этого уравнения с учетом условия конечности потенциала при $x \leq 0$ было записано в виде [30]

$$\varphi_1(x) = \varphi_1^+ \exp\left(\sqrt{\frac{\mu_3}{\mu_1}} Kx\right) + \frac{m\beta}{Ke\mu_3 S (N_D - N_A) \tau_R}, \quad (1.15)$$

где постоянная интегрирования φ_1^+ определялась из граничных условий. С использованием распределения потенциала вне кристалла в случае диэлектрической границы $x=0$ в виде

$$\varphi_{1d}(x) = \varphi^0 \exp(-Kx) \quad \text{при } x \geq 0, \quad (1.16)$$

где φ^0 амплитуда потенциала при $x=0$, а также условия отсутствия нормальной составляющей тока и непрерывности потенциала при $x=0$, были получены следующие соотношения [30]:

$$\varphi_d^{in}(x, z) = \frac{m\beta}{Ke\mu_3 S (N_D - N_A) \tau_R} \sin(Kz) \quad \text{при } x \leq 0, \quad (1.17)$$

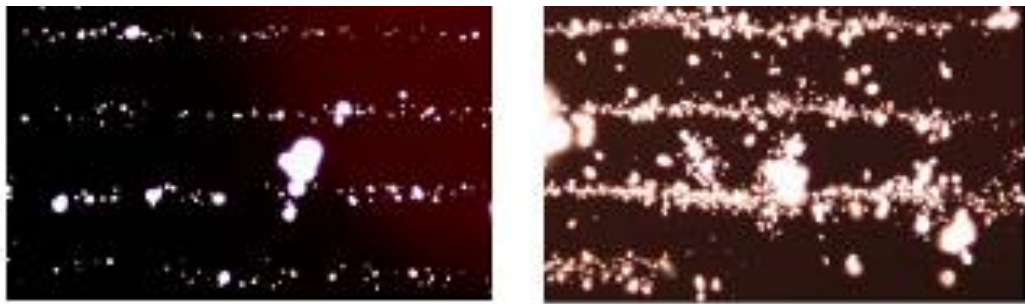
$$\varphi_d^{out}(x, z) = \frac{m\beta}{Ke\mu_3 S(N_D - N_A)\tau_R} \exp(-Kx)\sin(Kz) \quad \text{при } x \geq 0. \quad (1.18)$$

Как следует из соотношений (1.17), (1.18), создаваемое в кристалле класса симметрии $3m$, к которому относится ниобат лития, и над его диэлектрической границей электрическое поле, определяется значением компонент фотогальванического тензора третьего ранга β_{31} и β_{33} , в зависимости от поляризации световых волн, формирующих фоторефрактивную голограмму [30]. В случае проводящей (металлизированной) границы поле вне кристалла отсутствует, а при её диэлектрическом характере уменьшается по амплитуде по экспоненциальному закону, как $\exp(-2\pi x / \Lambda)$. Достижимые на диэлектрической границе (при $x=0$) значения напряженности электрического поля получены авторами [30] равными 10^6 В/м, для $m=0,10$, $\mu_1 = \mu_3$ и напряженности фотовольтаического поля $E_{ph} = 10^7$ В/м.

Оптический пинцет является способом контроля и управления веществом на микро- и наноуровне [87, 93, 94]. Первоначально предложенный для охлаждения атомных пучков [87], он превратился и в инструмент оптического захвата микрочастиц нейтрального диэлектрика и управления их положением [88].

Сильные неоднородные электрические поля, возникающие над поверхностью легированных кристаллов ниобата лития при лазерном воздействии за счет фотогальванического эффекта, описанные выше, представляют большой потенциал для исследования методов манипулирования микро- и нанообъектами. Данный метод можно рассматривать как тип фотоэлектрического пинцета, часто называемый фотогальваническим пинцетом [55]. К важным достоинствам такого метода относится неоднократное использование одной и той же подложки, сведение к минимуму вреда от перегрева захватываемых частиц за счёт использования маломощного источника излучения, возможность разделения по времени облучения и манипуляций с ними вследствие сохранения фотовольтаических полей в образце после формирования фоторефрактивной голограммы в течение дней или месяцев [53].

В последние годы заметно увеличилось число публикаций, посвященных развитию данного метода манипуляции наночастицами [20–24, 52–56]. В работах [20–23, 52–56] были исследованы объемные кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$. Авторами [24] представлены результаты структурирования ансамблей микро- и наночастиц на поверхности планарных волноводов, созданных в легированных ионами железа кристаллах ниобата лития X-среза методами мягкой протон-обменной технологии и при быстром облучении тяжелыми ионами, с использованием электрических полей волноводных фоторефрактивных голограмм. Одним из потенциальных преимуществ использования волноводной конфигурации является высокая интенсивность света и быстрая запись фоторефрактивных голограмм по сравнению с объемными кристаллами. Её использование позволило авторам [24] уменьшить время облучения на длине волны 532 нм до 3 с, что на два порядка меньше типичных значений, используемых в объемных кристаллах ниобата лития. Были выбраны два метода осаждения частиц: напуск на образец на воздухе и погружение в неполярную суспензию гексана. На рисунке 1.15 представлены результаты напуска частиц мела CaCO_3 ($d \sim 1\text{--}3$ мкм) на воздухе на поверхности двух исследованных волноводов.



a

б

Рисунок 1.15 – Микрофотография ансамбля осажденных напуском на воздухе частиц CaCO_3 ($d \sim 1\text{--}3$ мкм) после воздействия интерференционной картины с периодом $\Lambda = 50$ мкм в течение 20 мин для волновода, полученного внедрением ионов фтора с энергией 30 МэВ (*a*) и по мягкой протонно-обменной технологии (*б*) [24]

Результаты агрегирования таких же микрочастиц CaCO_3 ($d \sim 1-3$ мкм) в суспензии гексана на поверхности волновода, полученного внедрением ионов фтора с энергией 30 МэВ, представлены на рисунке 1.16. Структурированные ансамбли частиц были получены также на поверхности волновода, сформированного по мягкой протон-обменной технологии, но степень их агрегации в полосы была слабой.



Рисунок 1.16 – Микрофотография ансамбля частиц CaCO_3 ($d \sim 1-3$ мкм), осажденных в суспензии гексана на поверхность волновода, полученного внедрением ионов фтора с энергией 30 МэВ, после воздействия интерференционной картины с периодом $\Lambda = 65$ мкм в течение 30 с (*a*) и 3 с (*б*) [24]

В работе [52] представлены результаты по одномерному (1D) и двумерному (2D) структурированию ансамблей диэлектрических микрочастиц CaCO_3 ($d \sim 1-3$ мкм) и наночастиц алюминия Al ($d = 70$ нм), обусловленному силами диэлектрофореза на фотогальваническом кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ X- и Z-срезов. Здесь получено, что использование образцов Z-среза для 2D-агрегирования является предпочтительным. При конфигурации, показанной на рисунке 1.17,*a*, названной параллельной [52], заряды в кристалле X- или Y-среза мигрируют к краям однородно освещенной области, перпендикулярной оси C. В перпендикулярной геометрии (для Z-среза, [52]) заряды локализуются на обеих Z-поверхностях кристалла, вдоль всей однородно освещенной области (рисунок 1.17,*б*). В этом случае неоднородная 2D-засветка приводит к неоднородному 2D-распределению электрического поля с вектором напряженности, направленным вдоль полярной оси C.

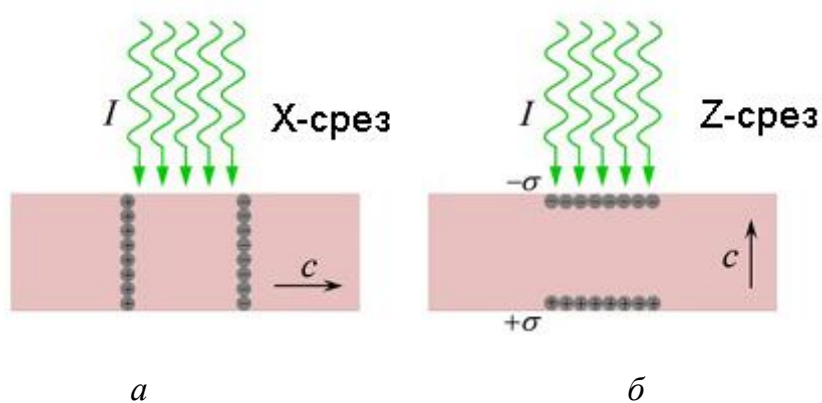


Рисунок 1.17 – Схема (а) параллельных и (б) перпендикулярных конфигураций, показывающих разделение заряда из-за фотовольтаического эффекта [52]

В работе [23] образцы $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ Y -среза, подвергнутые восстановительному отжигу, использовались для анализа захвата частиц за счет сил диэлектрфореза, возникающих при засветке бинарной картиной световых полосок с периодом $\Lambda = 422$ мкм. Было получено, что увеличение степени восстановления ионов железа, то есть отношения r концентраций Fe^{2+} и Fe^{3+} , до значений между 0,36 и 0,74, позволяет уменьшить время отклика более чем на порядок величины без необходимости увеличения мощности лазера.

Авторы [54] изучали роль анизотропии и метода нанесения микрочастиц мела (с диаметром $d \sim 1\text{--}3$ мкм), графита ($d \sim 1$ мкм), полистирола ($d \sim 1$ мкм), а также наночастиц серебра ($d \sim 100$ нм) и алюминия ($d \sim 60\text{--}80$ нм) на формирование из них картины, соответствующей распределению фотовольтаического поля по поверхности X -среза $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ с низкой степенью восстановления ($r = 0,052$). Было получено, что ансамбль изотропных частиц структурируется с таким же пространственным периодом Λ , как и фотогальваническая решетка, в то время как для частиц из анизотропного материала формирующаяся структура может иметь период Λ или $\Lambda/2$, в зависимости от метода их нанесения.

Как было показано в работе [53] на примере X -среза $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$, ключевую роль в обеспечении высокого качества картин агрегации микро- и наночастиц играет контраст m интерференционной картины, используемой для

фотогальванического формирования поверхностного потенциального рельефа. Наилучшие результаты здесь достигались для изотропных частиц при $m = 0,9$.

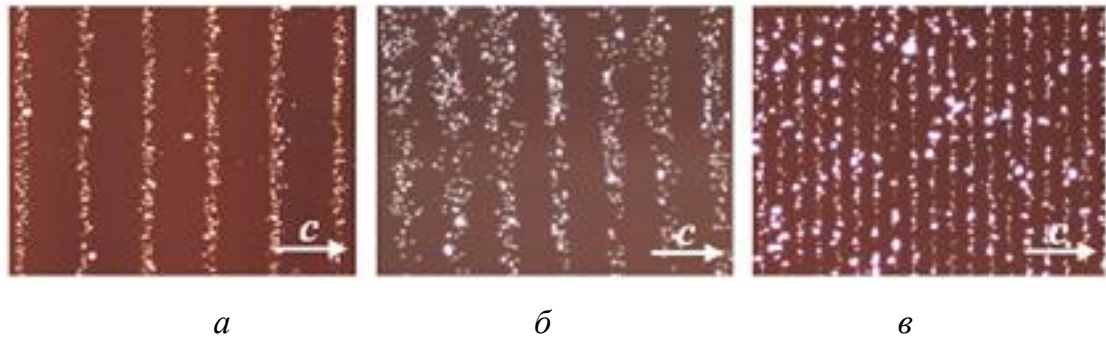


Рисунок 1.18 – Микрофотографии ансамбля частиц (а) серебра, (б) полистирена, (в) CaCO₃, осажденных на поверхность X-среза LiNbO₃:Fe после воздействия интерференционной картиной ($\lambda=532$ нм, лазер Nd:YAG) с периодом $\Lambda=50$ мкм (а), $\Lambda=35$ мкм (б) и $\Lambda=20$ мкм (в) [54]

Таким образом, в работах [20–23, 52–56] для управляемой агрегации микро- и наночастиц за счет фотовольтаических полей, создаваемых при неоднородном освещении, использовались кристаллы LiNbO₃:Fe, легированные ионами железа в процессе их синтеза из расплава. Как известно [29], большие значения фотовольтаических полей (50–100 кВ/см) наблюдаются и при легировании кристаллов LiNbO₃ ионами Cu. При этом может использоваться технология диффузионного легирования, позволяющая получить образцы с толщиной до 1 мм и с общей концентрацией меди от $5,3 \cdot 10^{24}$ до $1,45 \cdot 10^{26} \text{ м}^{-3}$ [29].

Наряду с использованием фотовольтаических полей для управления частицами небиологической природы, в последнее десятилетие проявляется интерес к его применению для управляемого воздействия на живые клетки и клеточные ансамбли. В статье [95] представлены результаты использования таких полей в биомедицинских исследованиях. При высоких напряженностях, достигающих 100 кВ/см, они способны необратимо перфорировать мембраны живых клеток. Авторы использовали этот эффект для уничтожения культур опухолей человека, выращенных на фотоэлектрическом материале – LiNbO₃:Fe

X-среза, в условиях *in vitro*, после облучения видимым светом. Смертельные дозы для гибели клеток были получены при облучении источниками света с низкой интенсивностью ($10\text{--}100 \text{ мВт/см}^2$), за время экспозиции порядка нескольких минут.

Таким образом, метод фотогальванического пинцета для захвата и манипулирования объектами по сравнению с традиционными оптическими манипуляторами позволяет неоднократно использовать монокристаллическую подложку и свести к минимуму вред от перегрева захватываемых частиц за счёт использования маломощного источника излучения. Методы структурирования микро- и наночастиц на поверхности легированных кристаллов ниобата лития при лазерном облучении требуют дальнейшего изучения и нуждаются в оптимизации для обеспечения высокого качества картин агрегации микро- и наночастиц. В частности, необходимо реализовать легирование подложек с требуемой ориентацией кристаллографических осей примесями, обеспечивающими фотогальванический механизм переноса заряда в приповерхностной области, при её неоднородном освещении.

1.3 Выводы

В данной главе представлен обзор научно-технических литературных источников, в которых изучаются и рассматриваются физические эффекты, связанные с индуцированными в сегнетоэлектрических кристаллах при температурных и световых воздействиях сильными электрическими полями, а также особенности их использования для генерации электронных пучков с энергией до 100 кэВ, рентгеновского и нейтронного излучения, и реализации устройств оптически управляемого манипулирования микрочастицами.

Анализ литературы позволяет сделать следующие выводы.

1. В экспериментальных исследованиях пироэлектрической генерации электронных пучков при термическом воздействии на монокристаллические образцы LiNbO_3 полярного Z -среза недостаточно исследованными являются обуславливающие её физические эффекты, имеющие место в условиях атмосферного и форвакуумного давления в разрядном промежутке.

2. В пироэлектрических источниках электронов ток эмиссии может генерироваться в виде импульсов с длительностью, существенно меньшей, чем 1 с, что представляет значительный интерес для их приложений в импульсных генераторах рентгеновского излучения. Однако детального экспериментального исследования динамики пироэлектрической генерации электронных пучков при термическом воздействии на монокристаллические образцы LiNbO_3 полярного Z -среза, в частности, микросекундном и наносекундном диапазонах, не проводилось.

3. Доза выходного рентгеновского излучения, генерируемого разработанными к настоящему времени пироэлектрическими источниками, является недостаточной для полноценной медицинской диагностики и других приложений. Это связано со сравнительно малой суммарной дозой электронов, излучаемых пироэлектрическими элементами за один цикл нагрев – охлаждение. Таким образом, важными задачами представляются изучение физических явлений, имеющих место при генерации электронных пучков

пирозлектрическими источниками сильных электрических полей, и оптимизация параметров устройств, основанных на их использовании.

4. Методы структурирования микро- и наночастиц на поверхности легированных кристаллов ниобата лития при лазерном облучении требуют дальнейшего изучения и нуждаются в оптимизации для обеспечения высокого качества картин агрегации микро- и наночастиц. Важной задачей представляется реализация легирования подложек с необходимой ориентацией кристаллографических осей примесями, обеспечивающими фотогальванический механизм переноса заряда в приповерхностной области, при её неоднородном освещении.

ГЛАВА 2 ТЕХНОЛОГИЯ ДИФФУЗИОННОГО ЛЕГИРОВАНИЯ ПЛАСТИН НИОБАТА ЛИТИЯ ИОНАМИ МЕДИ

Как отмечалось выше в п. 1.2.3, формирование сильных электрических полей в кристаллах ниобата лития оптическими методами возможно при их легировании фотогальванически активными примесями, такими как ионы Fe и Cu. При этом использование диффузионного легирования позволяет вырывать фотовольтаические и фотопроводящие параметры образцов в значительных пределах, открывая возможности для оптимизации условий оптически управляемого формирования в них сильных электрических полей с целью реализации на их основе компактных кристаллических ускорителей для генерации электронных пучков и рентгеновского излучения, и оптически перестраиваемых манипуляторов микро- и наночастицами. Для этого необходимо реализовать легирование подложек с требуемой ориентацией кристаллографических осей примесями, обеспечивающими фотогальванический механизм переноса заряда в приповерхностной области, при её неоднородном освещении.

В настоящей главе представлены результаты работ автора [96–102], выполненных совместно с Шандаровым С.М., Арестовым С.И., Орликовым Л.Н. и другими членами научной группы, по практической реализации технологии легирования пластин ниобата лития ионами Cu и отработке режимов, позволяющих создавать на её основе образцы с высокими фотовольтаическими и фоторефрактивными свойствами в приповерхностной области. Для экспериментальной реализации диффузионной технологии, описанной ранее в работе [29], были использованы пластины ниобата лития X-среза с толщиной от 1,2 до 1,8 мм. Диффузия проводилась при температуре 1000 °С как из металлических пленок, напыляемых на подложки различными методами, так и из оксидных слоев, полученных золь-гель синтезом Кузнецовой С.А. на кафедре неорганической химии НИ ТГУ.

2.1 Технология напыления пленок

2.1.1 Подготовка подложек

Для создания структур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ поверхностным диффузионным легированием использовались пластины X-среза из номинально нелегированного конгруэнтного ниобата лития и пластины ниобата лития, легированного оксидом магния (MgO). Толщины пластин и основные параметры сформированных структур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ приведены в таблице 2.1. Для всех пластин грани, перпендикулярные оси X, имели оптическую полировку, а для образцов № 5, 6 и 7 оптически полированными были и обе грани, перпендикулярные оси Z. До нанесения на пластины пленок были измерены их спектры оптического пропускания в диапазоне 320–1100 нм с помощью спектрофотометра GENESIS 2. Типичная спектральная зависимость пропускания для образца № 5, показанная на рисунке 2.1, соответствует результатам, приведенным в литературе [36], что свидетельствует о низкой концентрации примесей в использованных пластинах.

Таблица 2.1 – Параметры образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, полученных поверхностным диффузионным легированием

Номер и толщина образца, подложка	Метод нанесения и тип пленки	Толщина пленки, нм	Время диффузии, час	Средняя концентрация ионов меди c_{Cu^+} , M^{-3}	Средняя концентрация ионов меди $c_{\text{Cu}^{2+}}$, M^{-3}
1 1,7 мм $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$	магнетронное распыление, металлическая	100	2	$9,37 \cdot 10^{22}$	$1,02 \cdot 10^{23}$
2 1,7 мм $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$	магнетронное распыление, металлическая	200	3	$2,41 \cdot 10^{23}$	$1,63 \cdot 10^{24}$
3 1,8 мм LiNbO_3	магнетронное распыление, металлическая	260	20	$8,30 \cdot 10^{23}$	$6,53 \cdot 10^{24}$

Номер и толщина образца, подложка	Метод нанесения и тип пленки	Толщина пленки, нм	Время диффузии, час	Средняя концентрация ионов меди c_{Cu^+}, M^{-3}	Средняя концентрация ионов меди $c_{Cu^{2+}}, M^{-3}$
4 1,8 мм LiNbO ₃	магнетронное распыление, металлическая	900	9	$6,06 \cdot 10^{24}$	$2,69 \cdot 10^{25}$
5 1,2 мм LiNbO ₃	термическое напыление, металлическая	400		$1,82 \cdot 10^{24}$	$1,52 \cdot 10^{25}$
6 1,2 мм LiNbO ₃	ионно-магнетронное напыление, металлическая	550		$5,35 \cdot 10^{23}$	$9,32 \cdot 10^{24}$
7 1,2 мм LiNbO ₃	золь-гель синтез, оксидная	600		$7,01 \cdot 10^{23}$	$7,00 \cdot 10^{24}$

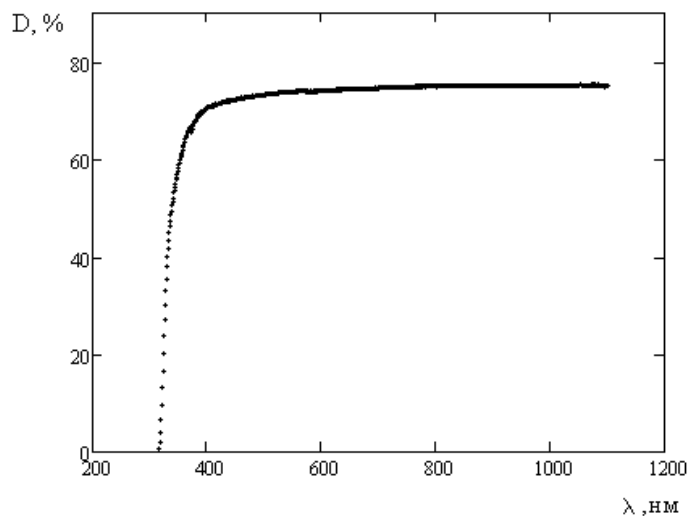


Рисунок 2.1 – Зависимость коэффициента пропускания от длины волны в образце № 5 до нанесения пленки Cu и проведения диффузии

Перед нанесением металлических пленок проводилась промывка подложки этиловым спиртом, с последующей очисткой в вакуумной камере источником газовых ионов холловского типа [99] при давлении 0,01 Па, в котором плотность тока и форма ионного пучка управлялась изменением потенциала от 0,5 до 3 кВ на центральном электроде.

2.1.2 Методы нанесения пленок

Для нанесения пленок, из которых проводилось диффузионное легирование в очищенные подложки LiNbO_3 , использовались следующие методы.

Магнетронное распыление

Пленки меди (Cu) наносились на полированную поверхность пластин X-среза из $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ (образцы № 1 и 2) с размерами $1,7 \times 10 \times 20 \text{ мм}^3$ и конгруэнтного ниобата лития LiNbO_3 (образцы № 3 и 4) с размерами $1,8 \times 9 \times 23,7 \text{ мм}^3$ по осям X, Y и Z, соответственно, методом магнетронного распыления с помощью малогабаритного магнетрона с источником питания импульсного типа, работающего на частоте 50 кГц, при давлении 0,1 Па.

Ионно-магнетронное напыление

При имплантации меди в образец № 5 с размерами $1,2 \times 10 \times 13,5 \text{ мм}^3$ в качестве источника ускоряющих ионов использовался ионный источник импульсно-периодического действия «ДИАНА». Имплантация проводилась при ускоряющем напряжении 20 кВ при давлении 0,01 Па. Импульсы ионного тока имели амплитуду до 2 А, при длительности 250 мкс. Частота следования импульсов составляла 50 Гц. Измеренная имплантируемая доза составляла 2×10^{18} ион/см².

Затем проводилось напыление медной пленки толщиной 500 нм на кристалл ниобата лития № 5 с помощью малогабаритного магнетрона, работающего на частоте 50 кГц, при давлении 0,1 Па.

Термическое напыление

Пленки Cu наносилась на полированную поверхность образца № 6 с размерами $1,2 \times 10 \times 13,5 \text{ мм}^3$ методом термического испарения меди в вакууме на установке термического испарения УВР-4 ($P = 10^{-2}$ Па, скорость формирования пленки 0,1 мкм/с).

Метод золь-гель синтеза

Оксидная пленка наносилась на образец № 7 с размерами $1,2 \times 10 \times 13,5 \text{ мм}^3$ методом золь-гель синтеза. Для синтеза пленки оксида меди (II) был приготовлен

пленкообразующий раствор (ПОР) на основе дигидрата хлорида меди и 96% этилового спирта. В пленкообразующем растворе формировалась устойчивая коллоидная система, со сроком хранения до 7 суток. При хранении пленкообразующего раствора в исследуемых составах протекают химические (гидролиз, поликонденсация) и физические процессы, что приводит к изменению состояния: истинный раствор переходит в золь, а затем в гель. Пленку получали из ПОР методом центрифугирования; скорость вращения центрифуги МРW-3410 составляла 3000 об./мин. Последующая термическая обработка проводилась в сушильном шкафу при температуре 60 °С в течение 1 часа, и отжигом в муфельной печи при температуре 400 °С, также в течение 1 часа.

Толщина металлических пленок при магнетронном распылении, ионно-магнетронном распылении и термическом напылении определялась интерференционным методом с помощью интерферометра Линника «МИИ-4». Толщину оксидной пленки, нанесенной по методу золь-гель синтеза, определяли на эллипсометре ЛЭФ-3М.

2.2 Технология диффузионного легирования

Полученные образцы с напыленными пленками, описанные выше в п. 2.2.1, подвергались отжигу в трубчатой электропечи СУОЛ-0,4/12 с карбидокремниевыми нагревателями (рисунок 2.2) со скоростью подъема температуры 12 К/мин, и с выдержкой в течение времени диффузии (см. таблицу 2.1) при температуре 1000 °С. Для подавления обратной диффузии Li_2O использовалась методика, предложенная в работе [103], в соответствии с которой пластина LiNbO_3 , с нанесенной на неё металлической либо оксидной пленкой, помещались данной стороной на поверхность дополнительной пластины из ниобата лития. В таком виде подложки помещались в электропечь. Эффект подавления обратной диффузии достигается, в данном случае, за счет высокой концентрации паров оксида лития в тонком воздушном зазоре между плоскими поверхностями пластин, при незначительном испарении с поверхности кристалла,

через которую реализуется диффузия Cu. Это препятствует дальнейшему их испарению из обеих пластин, поскольку изменение концентрации Li_2O в зазоре из-за связи с окружающей средой происходит достаточно медленно, вследствие малой площади его открытых боковых поверхностей.

После завершения диффузии, которая проводилась в воздушной атмосфере, электропечь выключалась, и происходило её естественное охлаждение. При наличии остатков пленки на пластинах они удалялись дополнительной оптической полировкой. Полученные образцы $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ имели равномерную по плоскости YZ светло-коричневую окраску. Оптическое пропускание пластин уменьшилось по сравнению с исходными из-за примесного поглощения центрами Cu^{2+} и Cu^+ .

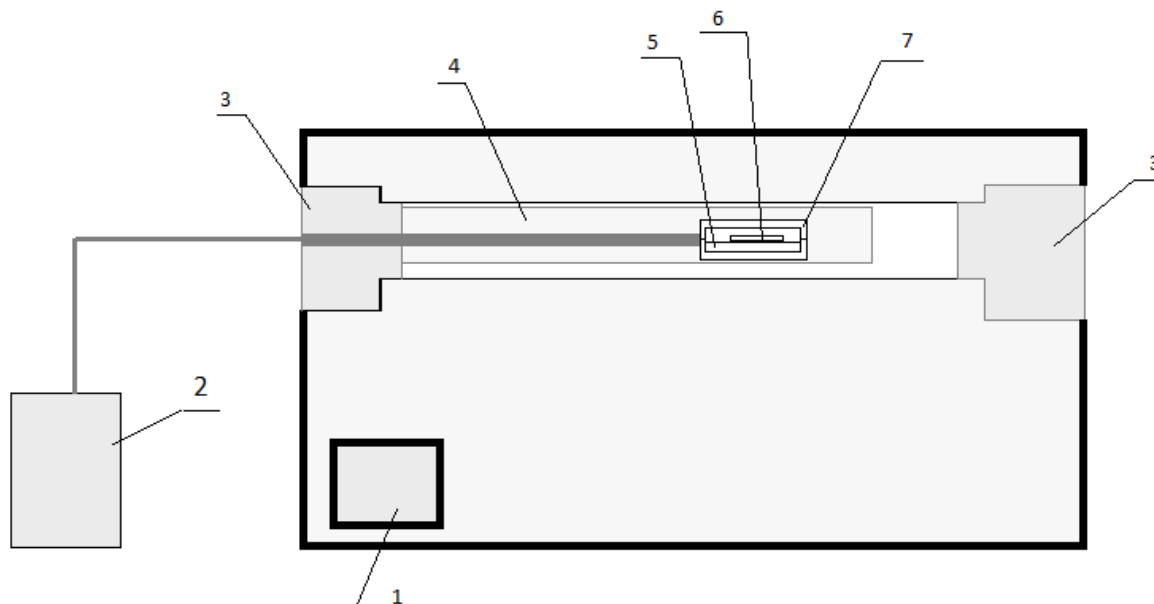


Рисунок 2.2 – Схема установки для диффузионного легирования:
 1 – блок управления; 2 – мультиметр; 3 – керамические заглушки;
 4 – алундовая ампула; 5 – вспомогательная пластина (LiNbO_3);
 6 – образец LiNbO_3 с пленкой; 7 – держатель

2.3 Исследование спектральных зависимостей оптического пропускания и расчет концентрации примесей

Для оценки уровня легирования пластин ниобата лития ионами Cu после высокотемпературной диффузии, в соответствии с известной методикой [29] применялся анализ спектральных зависимостей показателя поглощения. Для этого измерялись спектры оптического пропускания пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ в диапазоне длин волн 300–1100 нм с шагом 1 нм с использованием спектрофотометра СФ-56, представленные на рисунках 2.3 и 2.4. Как видно из данных рисунков, наименьшие изменения пропускания относительно наблюдавшихся до проведения диффузии (ср. с рисунком 2.1), имеют место для образцов 1 и 2, созданных в пластинах $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ (см. таблицу 2.1). Для них пленки Cu, создаваемые магнетронным распылением, имели минимальную толщину, 100 и 200 нм, а время диффузии (2 и 3 часа) также было минимальным, в сравнении с используемыми для других пластин LiNbO_3 , исходно не легированных. Следует отметить, что для всех исследованных образцов 1–7 характерно увеличение поглощения для спектральной области от 300 до 600 нм, где основной вклад в примесное поглощение вносят ионы Cu^+ [108, 109].

Значительно более существенное увеличение поглощения в данной области наблюдается при диффузии создаваемых также магнетронным распылением пленок меди в исходно не легированные пластины LiNbO_3 (образцы 3 и 4). В этом случае, уже при толщине пленки Cu 260 нм происходит не только сильное увеличение поглощения для области 300–600 нм, но и его заметный рост на длинах волн от 700 до 1100 нм (см. кривую 3 на рисунке 2.3). Эта полоса связана с примесным поглощением, обусловленным ионами Cu^{2+} [108, 109].

Дальнейший рост толщины диффундируемой пленки до 900 нм сопровождается сильным увеличением оптического поглощения, связанного с увеличением концентрации в образце 4 как ионов Cu^+ , так и Cu^{2+} .

Сравнение спектральных зависимостей 3 и 4 (рисунок 2.3) с кривой 5 (рисунок 2.4) показывает, что они качественно подобны друг другу. Это

позволяет сделать вывод о близких характеристиках процессов диффузии меди в пластины X-среза исходно нелегированного ниобата лития из пленок, создаваемых методами магнетронного и термического напыления.

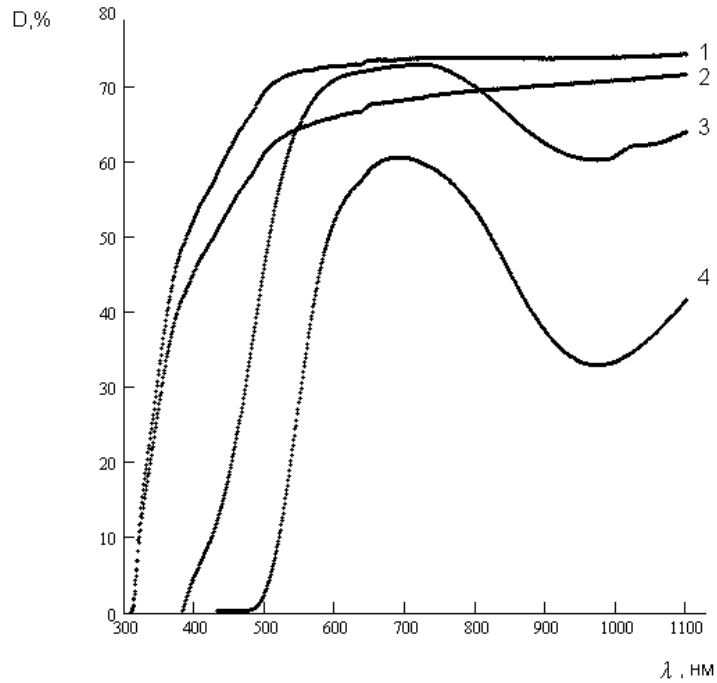


Рисунок 2.3 – Зависимость коэффициента пропускания от длины волны $D(\lambda)$ для образцов № 1, № 2, № 3 и № 4

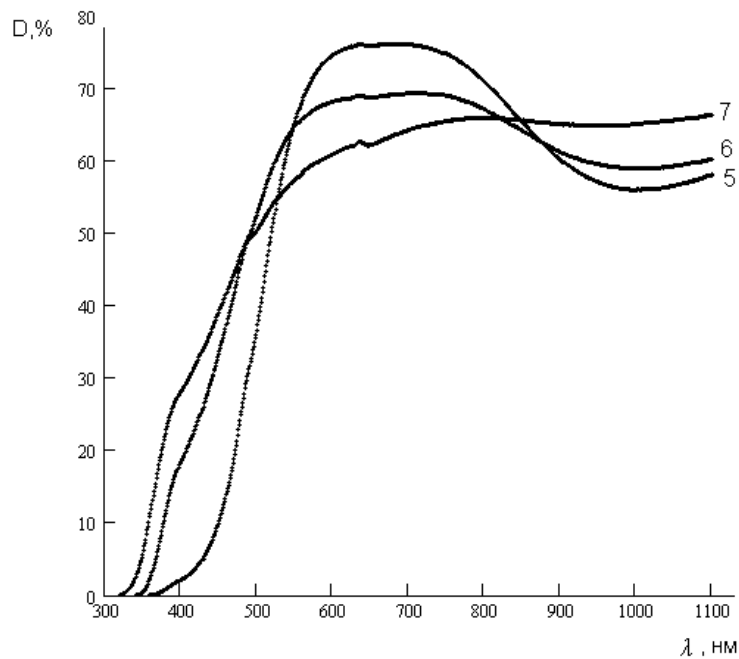


Рисунок 2.4 – Зависимость коэффициента пропускания от длины волны $D(\lambda)$ в образцах № 5, № 6, № 7

Сравнение спектральных зависимостей пропускания для образцов 5 и 6 с одинаковой толщиной подложек и равной продолжительностью отжига (см. таблицу 2.1) позволяет сделать вывод, что диффузия из пленки, полученной ионно-магнетронным напылением, даже при большей её толщине вносит существенно меньшие изменения в пропускание пластины $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, связанные с полосой поглощения Cu^+ на длинах волн от 350 до 550 нм. Меньшее поглощение для образца № 6 наблюдается и в спектральной области 850–1100 нм. Это может быть связано с более «рыхлой» структурой пленок металлической меди при их напылении ионно-магнетронным методом.

Качественные различия в спектре пропускания образца № 7 от наблюдаемого в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с номерами 3–6 свидетельствуют об отличии механизмов примесного поглощения в случае диффузии из оксидной пленки с толщиной 600 нм, полученной золь-гель синтезом, путем погружения в пленкообразующий раствор на основе дигидрата хлорида меди и 96% этилового спирта, от описанных в работах [108, 109]. Другим характерным отличием данного образца является диффузия меди в пластину ниобата лития с двух её поверхностей, перпендикулярных оси X , на которые и осаждается оксидная пленка при нанесении методом золь-гель синтеза.

Из измеренных спектров пропускания (см. рисунки 2.3 и 2.4) по известной методике [104] рассчитывались спектральные зависимости показателя поглощения. Для расчета необходимых значений френелевского коэффициента отражения от граней образцов использовалась формула Зельмейера для излучения, соответствующего обыкновенным (o) волнам в кристалле ниобата лития конгруэнтного состава ($\text{Li}/\text{Nb} = 0,946$), из работы [105]. Принималось также, что температура образцов соответствует значению $T = 293$ К, а ионы меди Cu^+ и Cu^{2+} равномерно распределены по их толщине вдоль оси X .

Спектральные зависимости показателя поглощения $k_0(\lambda)$, рассчитанные в рамках указанных приближений из экспериментальных данных, представленных на рисунках 2.3 и 2.4, приведены на рисунках 2.5 и 2.6, соответственно. Как известно [29, 108, 109], полосы поглощения вблизи $\lambda = 477$ нм связаны с

присутствием в ниобате лития ионов меди в зарядовом состоянии Cu^+ , а вблизи $\lambda = 1040$ нм – с ионами Cu^{2+} , при этом их концентрация определяется показателями поглощения $k_0(\lambda)$ на данных длинах волн:

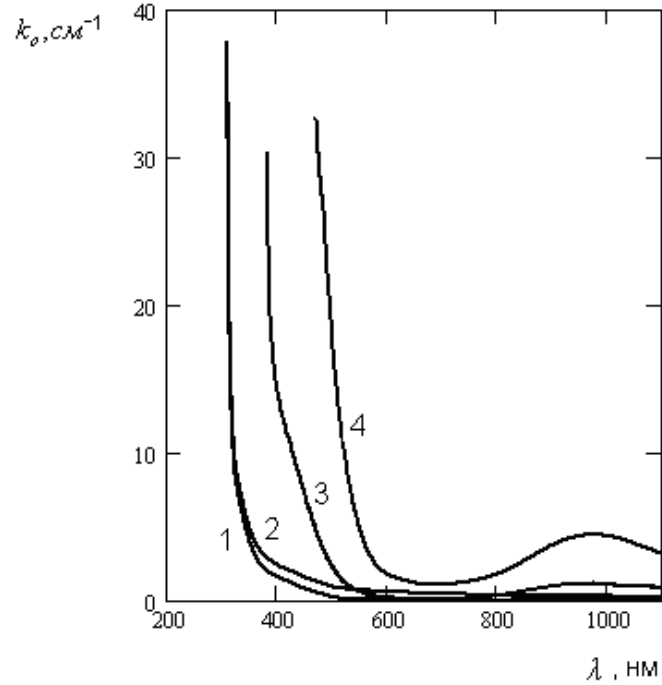


Рисунок 2.5 – Зависимость показателя поглощения от длины волны $k_0(\lambda)$ в образцах № 1, № 2, №3, № 4

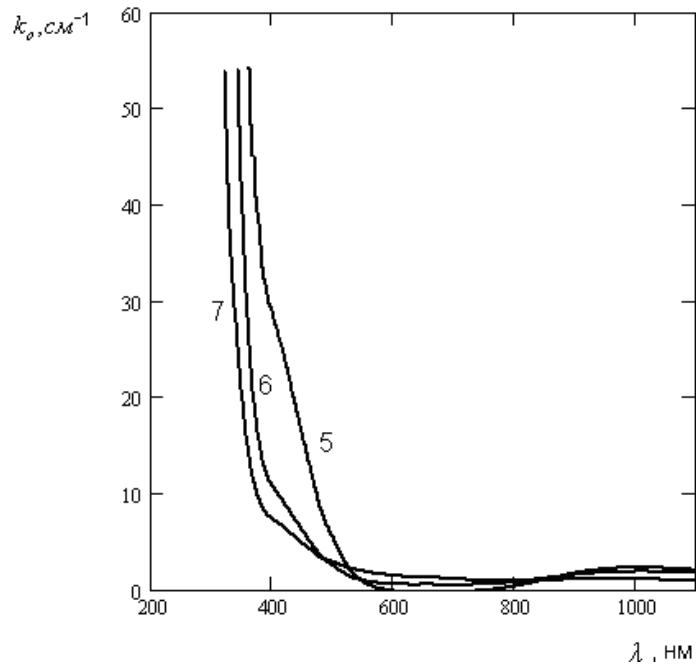


Рисунок 2.6 – Зависимость показателя поглощения от длины волны $k_0(\lambda)$ в образцах № 5, № 6, № 7

$$c_{\text{Cu}^+} = 2 \times 10^{21} \text{ м}^{-2} k_0(477 \text{ нм}), \quad (2.1)$$

$$c_{\text{Cu}^{2+}} = 6,8 \times 10^{22} \text{ м}^{-2} k_0(1040 \text{ нм}). \quad (2.2)$$

Использование соотношений (2.1) и (2.2) и экспериментальных данных, представленных на рисунках 2.5 и 2.6, позволило оценить средние концентрации ионов Cu^{2+} и Cu^+ в полученных высокотемпературной диффузией образцах, значения которых, полученные в приближении однородного распределения, приведены в шестом и пятом столбцах таблицы 2.1, соответственно.

Анализ этих данных показывает, что практическая реализация диффузионного легирования пластин $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ и номинально нелегированного конгруэнтного ниобата лития ионами меди из металлических и оксидных пленок позволила создать структуры $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с суммарной средней концентрацией Cu от $1,96 \times 10^{23}$ (образец № 1) до $3,3 \times 10^{25} \text{ см}^{-3}$ (образец № 4). Отношение концентраций ионов в зарядовых состояниях Cu^+ и Cu^{2+} , определяющее коэффициент фотопроводимости [29], в полученных образцах варьируется от $C_{\text{Cu}^+} / C_{\text{Cu}^{2+}} = 0,06$ (№ 6) до $C_{\text{Cu}^+} / C_{\text{Cu}^{2+}} = 0,92$ (№ 1).

2.4 Исследование распределения примеси в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 – № 7, полученных диффузионным легированием

Для образцов № 5, № 6 и № 7, имеющих оптически полированные грани, перпендикулярные оси Z , визуально наблюдалось уменьшение степени окраски, связанной с диффузией меди, с расстоянием x от поверхности, подвергавшейся диффузионной обработке. Распределение концентрации ионов меди по толщине образца экспериментально определялось по зависимости показателя поглощения образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ $k_{532}(x)$ от координаты x на длине волны $\lambda = 532 \text{ нм}$, попадающей в полосу от 300 до 600 нм, в которой, как отмечалось выше в подразд. 2.3, основной вклад в примесное поглощение вносят ионы Cu^+ . Для этого с помощью установки, схема которой показана на рисунке 2.7, измерялись

зависимости пропускания образцов № 5, № 6 и № 7 для сфокусированного излучения твердотельного лазера с удвоением частоты 1, распространяющегося вдоль оси Z , от их смещения относительно оптической оси системы.

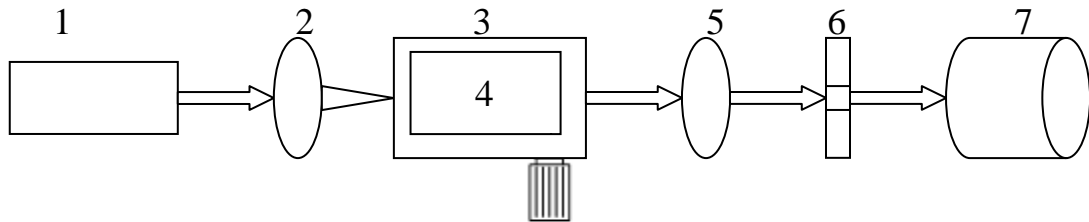


Рисунок 2.7 – Схема экспериментальной установки:

- 1 – твердотельный лазер ($\lambda=532$ нм); 2 – фокусирующая линза;
 3 – микрометрический столик; 4 – исследуемый кристалл; 5 – изображающая линза;
 6 – щелевая диафрагма; 7 – фотодиод ФД-24К

Излучаемый лазером 1 пучок на длине волны 532 нм с гауссовым распределением интенсивности и апертурным диаметром $2r_0 = 2$ мм фокусировался сферической линзой 2 с фокусным расстоянием $F_1 = 250$ мм таким образом, чтобы его перетяжка совпала с серединой исследуемого образца 4. Расчеты по известным соотношениям [110, 111] показывают, что в этом случае диаметр фокального пятна по уровню $1/e$ составляет $2\rho = 85$ мкм, а конфокальный параметр $b = 21$ мм превышает толщину кристаллов вдоль оси Z , $l = 13,5$ мм. Перемещение кристалла 4 вдоль оси X перпендикулярно зондирующему пучку осуществлялось с помощью столика 3 с микрометрическим винтом, с шагом 50 мкм. Изображающая линза 5, в качестве которой использовался объектив Триплет 2,8/78 с фокусным расстоянием $F_2 = 78$ мм, позволяла масштабировать изображение фокального пятна на щелевой диафрагме 6 с шириной около 1 мм таким образом, чтобы оно не сдвигалось при смещении кристалла в процессе измерений, а его размер незначительно превышал эту ширину. Фотодиод 7 позволял измерять зависимость мощности P_t прошедшего лазерного пучка через грани XU легированного кристалла ниобата лития и

щелевую диафрагму, от его смещения относительно зондирующего пучка. Проведенные эксперименты показали, что на некотором расстоянии от граней кристалла, через которые осуществлялась диффузия Cu, оптическое поглощение является минимальным и не превышающим $0,03 \text{ см}^{-1}$, а мощность прошедшего пучка достигает максимального значения $P_{t \max}$. Это позволяет для расчета зависимости показателя поглощения от координаты x использовать следующую простую формулу:

$$k_{532}(x) = -\frac{1}{l} \ln \frac{P_t(x)}{P_{t \max}}. \quad (2.3)$$

Результаты экспериментального измерения зависимостей $k_{532}(x)$, полученные для кристаллов № 5 – № 7 по описанной выше методике, представлены кружками на рисунках 2.8–2.10 соответственно.

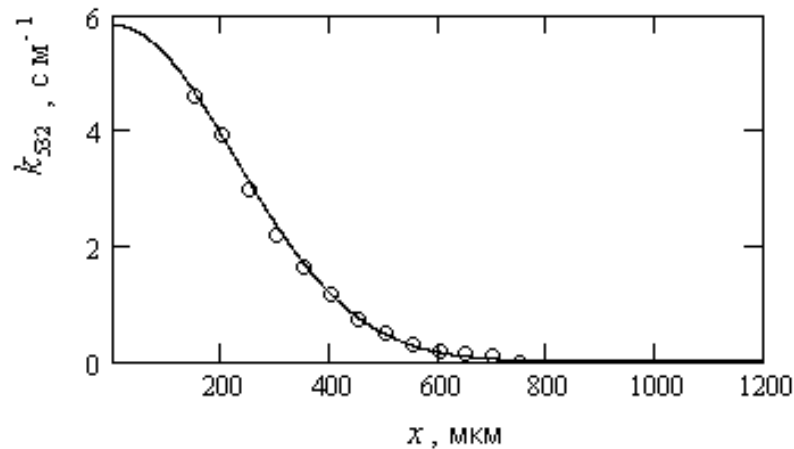


Рисунок 2.8 – Зависимость показателя оптического поглощения на длине волны 532 нм от глубины x в образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5, сформированном диффузией меди из металлической пленки, нанесенной методом термического напыления на грань $x = 0$.

Точки – эксперимент, сплошная линия – аппроксимация функцией Гаусса с полушириной $\Delta x = 316 \text{ мкм}$

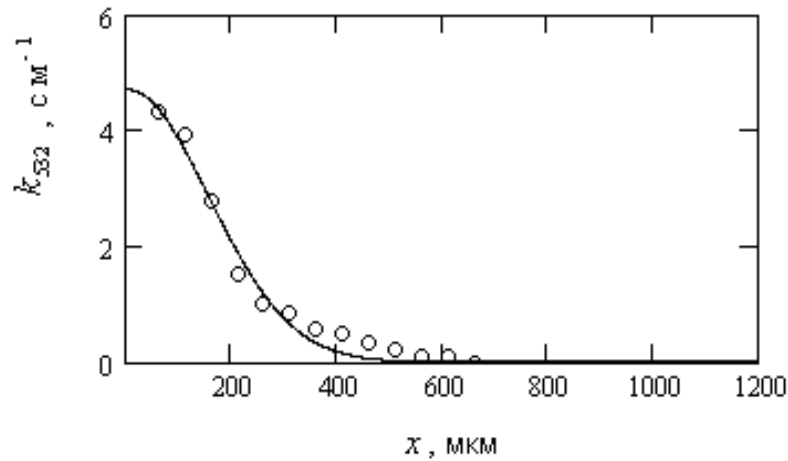


Рисунок 2.9 – Зависимость показателя оптического поглощения на длине волны 532 нм от глубины x в образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 6, сформированном диффузией меди из металлической пленки, нанесенной методом ионно-магнетронного напыления а грань $x = 0$. Точки – эксперимент, сплошная линия – аппроксимация функцией Гаусса с полушириной $\Delta x = 221$ мкм

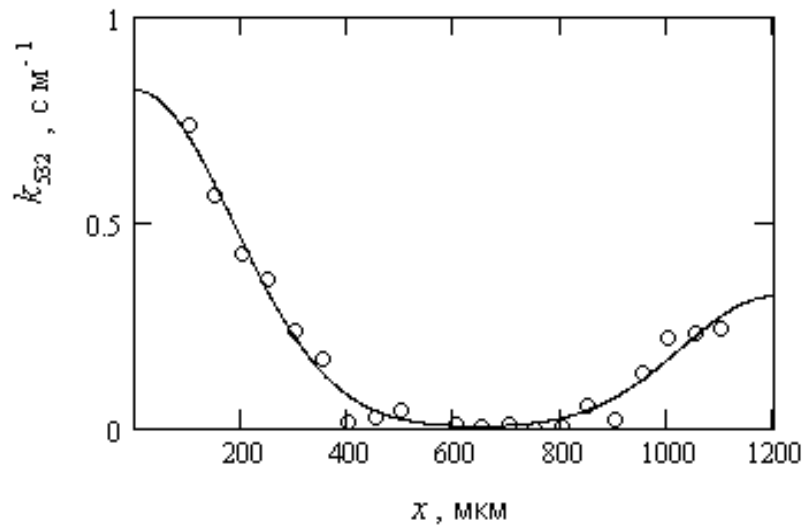


Рисунок 2.10 – Зависимость показателя оптического поглощения на длине волны 532 нм от координаты x в образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 7, сформированном диффузией из оксидных пленок, нанесенных золь-гель методом на грани $x = 0$ и $x = 1200$ мкм. Точки – эксперимент, сплошная линия – аппроксимация комбинацией функций Гаусса с полушириной $\Delta x_0 = 261$ мкм и $\Delta x_d = 248$ мкм и значениями в максимумах $k_{m0} = 8,20$ и $k_{md} = 3,20$ см^{-1}

Проведенный анализ экспериментальных данных, представленных на рисунках 2.8 и 2.9, показал, что зависимости показателя оптического поглощения в образцах № 5 и № 6 могут быть удовлетворительно аппроксимированы функцией Гаусса

$$k_{532}(x) = k_m \exp\left(-\frac{x^2}{\Delta x^2}\right), \quad (2.4)$$

со значениями для максимума $k_m = 5,82$ и $4,71 \text{ см}^{-1}$ и для полуширины $\Delta x = 316$ и 221 мкм , соответственно. Естественно предположить, что показатель поглощения на длине волны 532 нм , в полосе примесного поглощения от 300 до 600 нм , линейно связан с концентрацией ионов Cu^+ , распределение которой по глубине в образцах № 5 и № 6 также определяется функцией Гаусса:

$$C_{\text{Cu}^+}(x) = C_m^{\text{Cu}^+} \exp\left(-\frac{x^2}{\Delta x^2}\right). \quad (2.5)$$

Максимальные значения $C_m^{\text{Cu}^+}$ для концентрации ионов меди в зарядовом состоянии Cu^+ можно оценить с использованием средних значений c_{Cu^+} , приведенных в пятом столбце таблицы 2.1, из следующей формулы:

$$c_{\text{Cu}^+} = \frac{1}{d} \int_0^d C_{\text{Cu}^+}(x) dx = \frac{C_m^{\text{Cu}^+}}{d} \int_0^d \exp\left(-\frac{x^2}{\Delta x^2}\right) dx = \frac{\sqrt{\pi} \Delta x}{2d} \operatorname{erf}\left(\frac{d}{\Delta x}\right) C_m^{\text{Cu}^+}, \quad (2.6)$$

где $\operatorname{erf}(t)$ – функция (или интеграл) ошибок [112, 113]. Расчет показывает, что $C_m^{\text{Cu}^+} = 7,80 \cdot 10^{24}$ и $C_m^{\text{Cu}^+} = 4,64 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$ для образцов № 5 и № 6 соответственно.

Полагая, что отношение концентраций ионов в зарядовых состояниях $C_{\text{Cu}^+} / C_{\text{Cu}^{2+}}$ не зависит от координаты x и используя средние значения $c_{\text{Cu}^{2+}}$ из шестого столбца таблицы 2.1, можно оценить максимальные значения $C_m^{\text{Cu}^{2+}}$ для концентрации ионов меди в зарядовом состоянии Cu^{2+} в образцах № 5 и № 6, как $C_m^{\text{Cu}^{2+}} = 6,51 \cdot 10^{25}$ и $C_m^{\text{Cu}^{2+}} = 7,78 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-3}$.

Распределение показателя поглощения по координате x в образце № 7, сформированном из оксидных пленок, нанесенных золь-гель методом на грани $x = 0$ и $x = 1200$ мкм, представленное точками на рисунке 2.10, удовлетворительно аппроксимируется комбинацией двух функций Гаусса. Это позволяет описать распределение концентрации ионов Cu^+ в данном образце зависимостью

$$C_{\text{Cu}^+}(x) = C_{m0}^{\text{Cu}^+} \exp\left(-\frac{x^2}{\Delta x_0^2}\right) + C_{md}^{\text{Cu}^+} \exp\left[-\frac{(x-d)^2}{\Delta x_d^2}\right], \quad (2.7)$$

с параметрами $C_{m0}^{\text{Cu}^+} = 2,65 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$, $\Delta x_0 = 261$ мкм, $C_{md}^{\text{Cu}^+} = 1,04 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$ и $\Delta x_d = 248$ мкм. Таким же профилем можно характеризовать распределение концентрации ионов меди в зарядовом состоянии Cu^{2+} , с соответствующими максимальными значениями $C_{m0}^{\text{Cu}^{2+}} = 2,65 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-3}$ и $C_{md}^{\text{Cu}^{2+}} = 1,04 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-3}$.

Как следует из проведенного выше анализа и рисунков 2.8–2.10, распределение ионов меди в полученных образцах соответствует известной модели твердотельной диффузии из мгновенного поверхностного источника [106]. В рамках данной модели её глубина Δx связана с коэффициентом диффузии D_{Cu}^X , где нижний и верхний индексы относятся к материалу диффузанта и кристаллографической оси, вдоль которой она реализуется, и продолжительностью процесса t_{dif} , известным соотношением [106, 114]:

$$D_{\text{Cu}}^X = \frac{\Delta x^2}{4t_{dif}}. \quad (2.8)$$

Оценка коэффициента диффузии из найденных параметров для Δx в образцах № 5 и № 6, а также для Δx_0 и Δx_d в образце № 7, дает значения D_{Cu}^X от 0,38 до 0,77 мкм²/с, сравнительно близкие к величине $D_{\text{Cu}}^Y = (1,0 \pm 0,2) \text{ мкм}^2/\text{с}$, полученной авторами [107] для Y -среза LiNbO_3 при такой же температуре $T_{dif} = 1000$ °С.

2.5 Выводы

В настоящей главе представлены результаты работ [96–102], выполненных автором совместно с Шандаровым С.М., Арестовым С.И., Орликовым Л.Н. и другими членами научной группы, по практической реализации технологии диффузионного легирования ионами меди пластин X-среза номинально нелегированных конгруэнтных кристаллов ниобата лития, а также ниобата лития, легированного оксидом магния. Основные результаты состоят в следующем.

1. Оработаны технологические процессы поверхностного легирования ионами меди пластин ниобата лития методом высокотемпературной диффузии из металлических пленок, сформированных магнетронным напылением, термовакuumным напылением, комбинацией ионной имплантации и магнетронного распыления, а также из оксидных пленок, полученных методом золь-гель синтеза. Реализованная технология диффузионного легирования медью подложек конгруэнтного ниобата лития методом высокотемпературной диффузии позволила сформировать микроструктурированные образцы $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ со средней суммарной концентрацией ионов меди Cu^+ и Cu^{2+} от $1,96 \times 10^{23} \text{ м}^{-3}$ до $3,30 \times 10^{25} \text{ м}^{-3}$, и с отношением их средних концентраций $C_{\text{Cu}^+} / C_{\text{Cu}^{2+}}$ от 0,06 до 0,92.

2. Разработана методика анализа распределения концентрации ионов меди Cu^+ по координате x образца, по зависимости его пропускания для сфокусированного лазерного пучка с длиной волны 532 нм, распространяющегося вдоль оси Z , от смещения относительно оптической оси системы. Проведенные эксперименты показали, что при удалении от грани, через которую осуществлялась диффузия, уменьшение показателя поглощения образцов, который на длине волны 532 нм определяется концентрацией $C_{\text{Cu}^+}(x)$ ионов меди в зарядовом состоянии Cu^+ , описывается функцией Гаусса. Таким образом, их

распределение соответствует модели твердотельной диффузии из мгновенного поверхностного источника.

3. Проведенные оценки для экспериментально исследованных образцов показали, что они являются микроструктурированными, при этом полуширина гауссовых распределений для них изменяется в пределах от ~ 220 до ~ 320 мкм, а максимальные значения концентрации ионов Cu^+ – от $1,0 \cdot 10^{24}$ до $7,8 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$, Cu^{2+} – от $1,0 \cdot 10^{25}$ до $7,8 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-3}$.

Получено, что в рамках модели твердотельной диффузии из мгновенного поверхностного источника её коэффициент D_{Cu}^X в исследованных образцах X-среза LiNbO_3 изменяется, в зависимости от метода нанесения пленок, из которых осуществляется диффузия меди, от 0,38 до 0,77 мкм²/с.

ГЛАВА 3 ФОРМИРОВАНИЕ ПОЛЯ ПРОСТРАНСТВЕННОГО ЗАРЯДА ФОТОРЕФРАКТИВНЫХ РЕШЕТОК В ПЛАСТИНАХ $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-СРЕЗА

Как отмечалось выше в п. 1.2.3, задача создания оптически управляемых манипуляторов микро- и наночастицами (оптических пинцетов) вызвала значительный интерес к исследованию неоднородных электрических полей большой напряженности, возникающих над поверхностью легированных кристаллов ниобата лития при лазерном воздействии за счет фотогальванического эффекта. Диффузионное легирование, реализации которого была посвящена глава 2, позволяет регулировать фотовольтаические и фотопроводящие параметры образцов ниобата лития, что делает возможным оптимизацию условий оптически управляемого формирования в них сильных электрических полей методами динамической голографии. Для практической реализации оптических пинцетов необходимо, чтобы электрическое поле в таких образцах было максимальным и на границе с окружающей средой. Как показано в работе [30] для образцов X-среза LiNbO_3 с фотогальваническим механизмом формирования фоторефрактивных голограмм, это имеет место при диэлектрическом характере граничной среды. Благодаря линейному электрооптическому эффекту анализ формируемых в таких образцах электрических полей, распределение которых определяется координатной зависимостью интенсивности интерференционного светового поля, может быть проведен с использованием дифракции света на соответствующей объемной фазовой голограмме [25, 27, 29].

В настоящей главе представлены результаты работ [96, 98, 100–102], выполненных автором совместно с Н.Н. Смалем, С.М. Шандаровым и другими членами научной группы, по исследованию формирования поля пространственного заряда фоторефрактивных решеток в легированных ионами Cu пластинах ниобата лития X-среза, в том числе и полученных по технологии высокотемпературной диффузии, реализация которой рассмотрена в главе 2.

3.1 Экспериментальная установка и методика экспериментального исследования динамики формирования поля пространственного заряда

Схема экспериментальной установки для исследования динамики формирования поля пространственного заряда методом динамической голографии в полученных образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза [98, 100, 102] представлена на рисунке 3.1. Луч света от одночастотного твердотельного лазера Л1 с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм, мощностью $P_0 = 25$ мВт и вектором поляризации, ортогональным (или параллельным) плоскости рисунка (т.е. плоскости XZ кристалла), имеющий после коллиматора КЛ апертуру 4 мм, расщепляется светоделительным кубом СК на два пучка с суммарной интенсивностью $J_{p1} + J_s$ от 127 до 637 мВт/см². Эти пучки с помощью призмы П сводились под углом $2\theta_B^{green}$ от $0,67^\circ$ до $12,5^\circ$ (θ_B^{green} – угол Брэгга для излучения с длиной волны 532 нм) в исследуемом образце КР симметрично относительно нормали к его входной грани. Формируемая ими при этом интерференционная картина характеризуется параллельным полярной оси Z вектором решетки \mathbf{K} и имеет пространственный период $\Lambda = 2\pi/|\mathbf{K}|$ от 2,44 до 45 мкм. В данном случае пропускающая фоторефрактивная голограмма в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза записывается обыкновенными (или необыкновенными) волнами за счет пространственного перераспределения носителей заряда вследствие фотогальванического эффекта и считывается за счет модуляции показателя преломления, обусловленной линейным электрооптическим эффектом.

Считывание фоторефрактивной голограммы в процессе её формирования осуществлялось методом брэгговской дифракции светового пучка с длиной волны $\lambda_r = 655$ нм, излучаемого лазерным диодом Л2 с выходной мощностью $P_{ir} = 6$ мВт и распространяющегося в той же плоскости (рисунок 3.1), что и записывающие пучки. Вектор поляризации считывающего луча также ориентировался перпендикулярно (или параллельно) этой плоскости, возбуждая в кристалле

обыкновенную (или необыкновенную) волну. Встроенная в корпус диода Л2 линза подстраивалась таким образом, чтобы угловая расходимость излучаемого им пучка в плоскости XZ образца была минимальной. При этом угол падения считывающего луча на его входную грань выбирался равным углу Брэгга Θ_B^{red} для излучения с используемой длиной волны 655 нм, определяемым из соотношения

$$\Theta_B^{red} = \arcsin\left(\frac{\lambda_r}{\lambda_w} \sin \Theta_B^{green}\right) \approx \frac{\lambda_r}{\lambda_w} \Theta_B^{green}, \quad (3.1)$$

а его точная подстройка осуществлялась по максимуму интенсивности I_d дифрагированного пучка при юстировке установки. Временные зависимости мощности прошедшего через исследуемый образец считывающего пучка с интенсивностью $J_{p2}(t)$ и пучка с интенсивностью $J_d(t)$, дифрагированного на записываемой решетке, фиксировались с помощью фотодиодов ФД1 и ФД2 и системы обработки данных МА, включающей два цифровых микроамперметра типа В7-40/1, интерфейс и персональный компьютер.

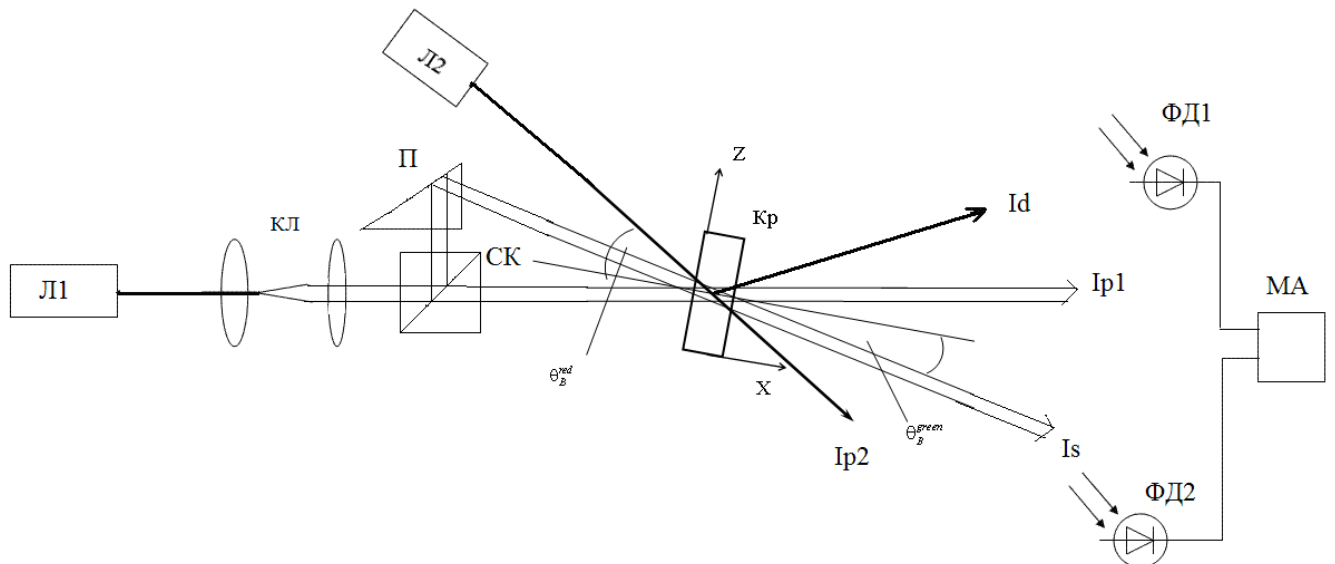


Рисунок 3.1 – Схема экспериментальной установки

Перед каждым экспериментом исследуемые образцы подвергались отжигу при температуре 190°C для стирания записанных в них ранее фоторефрактивных голограмм. Включению записывающих голограмму пучков J_{p1} и J_s в момент времени $t = 0$ предшествовало включение считывающего пучка $J_{p2}(t)$; временные интервалы между отсчетами мощностей пучков $P_{p2}(t)$ и $P_d(t)$ составляли 0,1 с.

Следует отметить, что считывающее излучение с $\lambda_r = 655$ нм оказывает слабое влияние на формирование фоторефрактивных голограмм записывающими пучками с $\lambda_w = 532$ нм, вследствие сильного уменьшения фотовольтаических постоянных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с длиной волны [62].

3.2 Экспериментальные исследования динамики формирования фоторефрактивных решеток излучением с длиной волны 532 нм в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза

В экспериментах по динамике формирования фоторефрактивных решеток, кроме образцов № 1–7, параметры которых представлены выше в таблице 2.1, использовались также пластины $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, изготовленные из монокристаллов с традиционным способом легирования, путем добавления CuO в исходную шихту. Размеры этих образцов с номерами 8–10, а также рассчитанные для них на основании экспериментально измеренных показателей оптического поглощения $k_0(1040 \text{ нм})$ по формулам (2.1) и (2.2) значения концентрации ионов меди C_{Cu^+} и $C_{\text{Cu}^{2+}}$ (см. описание соответствующей методики выше в подразд. 2.3) приведены в таблице 3.1.

Значительное оптическое поглощение образцов № 8 и 9 в спектральной области 432–520 нм не позволило измерить их показатели поглощения $k_0(477 \text{ нм})$ на длине волны 477 нм и оценить концентрацию ионов C_{Cu^+} в зарядовом состоянии Cu^+ по формуле (2.1).

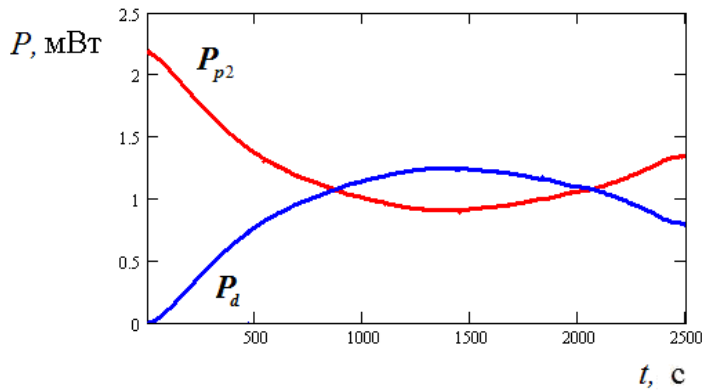
Таблица 3.1 – Параметры образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, изготовленных из монокристаллов с традиционным способом легирования, путем добавления CuO в исходную шихту

Номер образца	Размеры, мм^3	Концентрация ионов меди C_{Cu^+} , М^{-3}	Концентрация ионов меди $C_{\text{Cu}^{2+}}$, М^{-3}
8	5,0×6,0×31,0		$5,04 \cdot 10^{24}$
9	2,0×12,0×13,4		$7,88 \cdot 10^{25}$
10	1,7×7,8×18,3	$2,66 \cdot 10^{24}$	$1,28 \cdot 10^{25}$

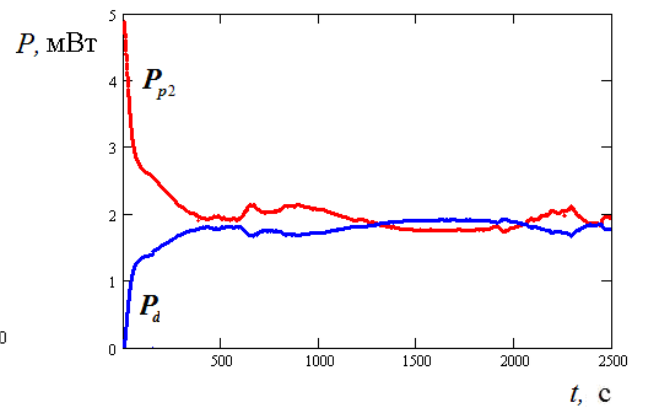
Экспериментальные исследования динамики формирования фоторефрактивных решеток с пространственным периодом $\Lambda = 2,44$ мкм излучением с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм методом дифракции считывающего лазерного пучка с $\lambda_r = 655$ нм в образцах $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 1 и № 2 (см. таблицу 2.1), полученных поверхностным диффузионным легированием, показали, что за время экспозиции 500 с их дифракционная эффективность достигает значений, не превышающих $2,5 \cdot 10^{-4}$. Это может быть связано с тем, что, как показали исследования по визуализации картин генерации второй гармоники в исходных пластинах $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$, проведенные М.В. Бородиным, они не являются монодоменными.

Характерные экспериментальные временные зависимости для мощностей прошедшего через фоторефрактивную решетку считывающего пучка $P_{p2}(t)$ и дифрагированного пучка $P_d(t)$, полученные для образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 3 и № 4 (см. таблицу 2.1), полученных поверхностным диффузионным легированием, представлены на рисунках 3.2,а и б. В экспериментах с образцами № 3 и № 4 использовались записывающие пучки с близкими интенсивностями $J_{p1} \approx J_s \approx 318$ мВт/см², возбуждающие в кристалле обыкновенные волны (см. рисунок 3.1), так что контраст записывающей интерференционной картины имел значение $m \approx 1$. Пространственный период формируемых в этих образцах фоторефрактивных решеток составлял 2,44 мкм. Для зондирующего (падающего) пучка с длиной волны $\lambda_r = 655$ нм, также возбуждающего в соответствующем

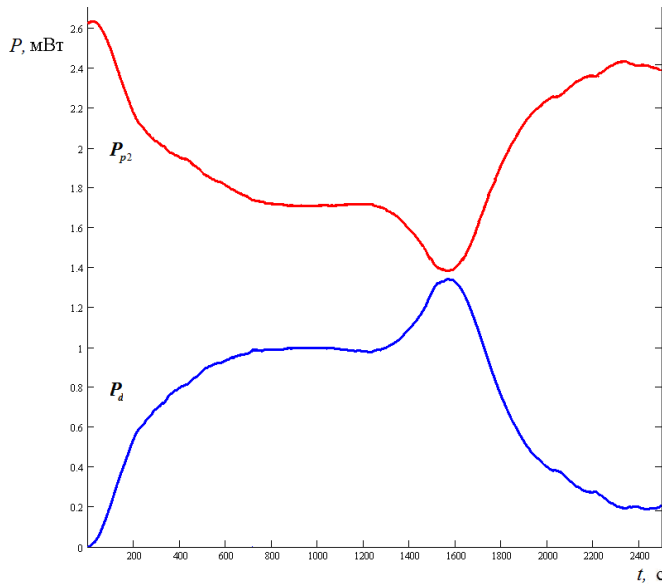
образце обыкновенную волну, интенсивность излучения не превосходила 20 мВт/см^2 .



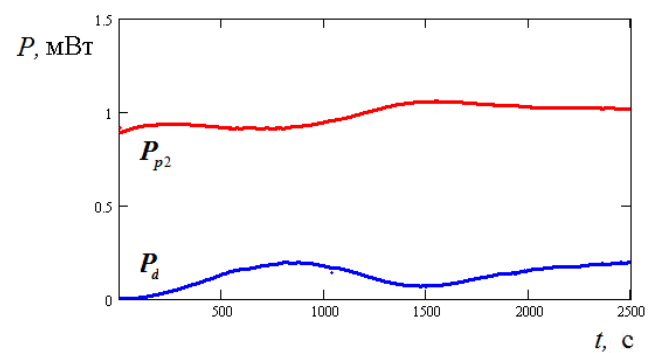
a – образец № 3



б – образец № 4



в – образец № 5



з – образец № 6

Рисунок 3.2 – Экспериментальные временные зависимости мощностей прошедшего (P_{p2}) и дифрагированного (P_d) пучков с длиной волны 655 нм, считывающих динамические фоторефрактивные решетки, формируемые записывающими лазерными пучками с длиной волны 532 нм в образцах № 3 и № 4 (поляризация записывающих пучков и считывающего пучка соответствует обыкновенным волнам) и в образцах № 5 и № 6 (поляризация записывающих пучков и считывающего пучка соответствует необыкновенным волнам)

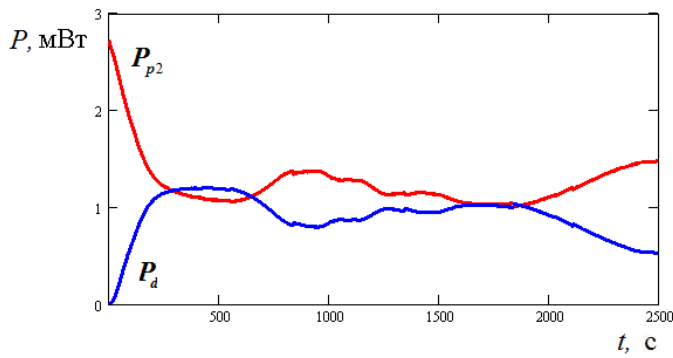
В образцах № 5 и № 6 наблюдаемая эффективность дифракции для обыкновенных волн не превосходила 20 %. Характерные экспериментальные временные зависимости для мощностей считывающего пучка $P_{p2}(t)$ и дифрагированного пучка $P_d(t)$ ($\lambda_r = 655$ нм) при их поляризации, соответствующей необыкновенным волнам, полученные для образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 и № 6 (см. таблицу 2.1), сформированных поверхностным диффузионным легированием, представлены на рисунке 3.2, в, г. В экспериментах с данными образцами также использовались записывающие пучки ($\lambda_w = 532$ нм) с близкими интенсивностями $J_{p1} \approx J_s \approx 64$ мВт/см², но соответствующие необыкновенным волнам, формирующими фоторефрактивные решетки с контрастом $m \approx 1$ и пространственным периодом $\Lambda = 2,5$ мкм.

В связи с малым значением дифракционной эффективности, не превышающей 3,8%, подробных экспериментальных исследований формирования фоторефрактивных решеток в образце № 7 не проводилось.

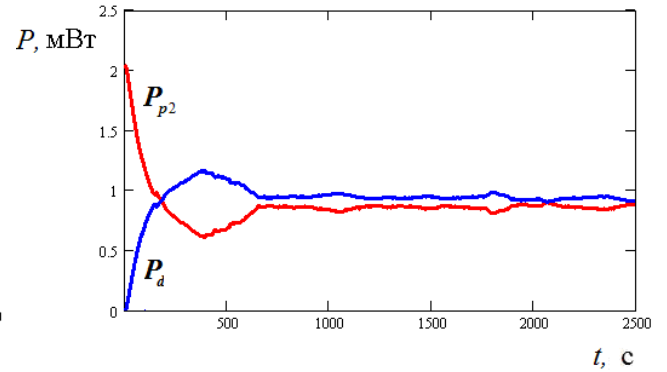
Таким образом, как видно из рисунка 3.2, как скорости роста мощности дифрагированного пучка $P_d(t)$, так и достигаемые ею максимальные значения, для образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 3 – № 6, полученных поверхностным диффузионным легированием (см. таблицу 2.1), существенно различаются. Если для образцов № 3 и № 4 мощность дифрагированного пучка в процессе формирования фоторефрактивной решетки может быть близкой к мощности пучка, прошедшего через нее, то для структур № 5 и № 6 выполняется неравенство $P_d(t) < P_{p2}(t)$. Максимальная скорость нарастания мощности дифрагированного пучка на начальном участке наблюдается для образца № 4 (см. рисунок 3.2, б), с максимальным значением концентрации $C_{\text{Cu}^+} = 6,06 \cdot 10^{24}$ м⁻³, а минимальная – для структуры № 6 (рисунок 3.2, г), с минимальной величиной $C_{\text{Cu}^+} = 5,35 \cdot 10^{23}$ м⁻³.

Для образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 8 – № 10, изготовленных из монокристаллов с традиционным способом легирования, путем добавления CuO в исходную

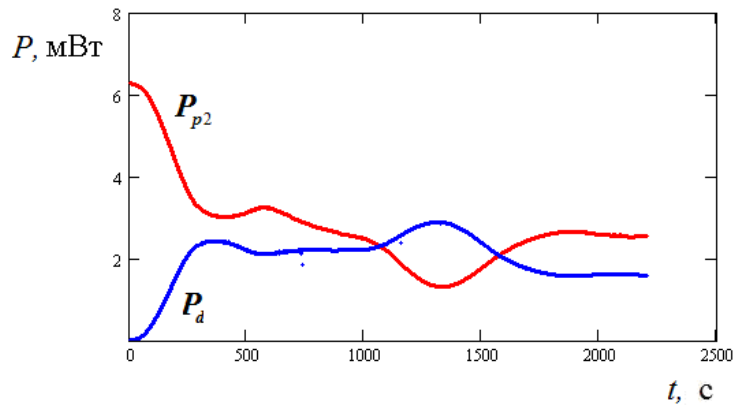
шихту, характерные экспериментальные временные зависимости для мощностей прошедшего через голограмму считывающего пучка $P_{p2}(t)$ и дифрагированного пучка $P_d(t)$ представлены на рисунке 3.3.



a – образец № 8



б – образец № 9



в – образец № 10

Рисунок 3.3 – Экспериментальные временные зависимости мощностей прошедшего (P_{p2}) и дифрагированного (P_d) пучков с длиной волны 655 нм, считывающих динамические фоторефрактивные решетки, формируемые записывающими лазерными пучками с длиной волны 532 нм в образцах № 8 – № 10. Поляризация записывающих пучков и считывающего пучка соответствует обыкновенным волнам

Из рисунка 3.3 следует, что мощность дифрагированного пучка для всех исследованных образцов с объемным легированием в процессе записи фоторефрактивных решеток лазерными пучками с длиной волны 532 нм может

превосходить таковую для прошедшего пучка, а наибольшая скорость его роста имеет место для образца № 9.

Кинетика роста дифракционной эффективности формируемых фоторефрактивных решеток для описанных выше экспериментов с образцами № 3 – № 6 и № 8 – № 10, определяемая, как и в работах [26, 29, 83], соотношением

$$\eta(t) = \frac{P_d(t)}{P_{p2}(t) + P_d(t)}, \quad (3.2)$$

представлена точками на рисунках 3.4 и 3.5 для образцов с поверхностным легированием, и на рисунке 3.6 – для образцов с объемным легированием.

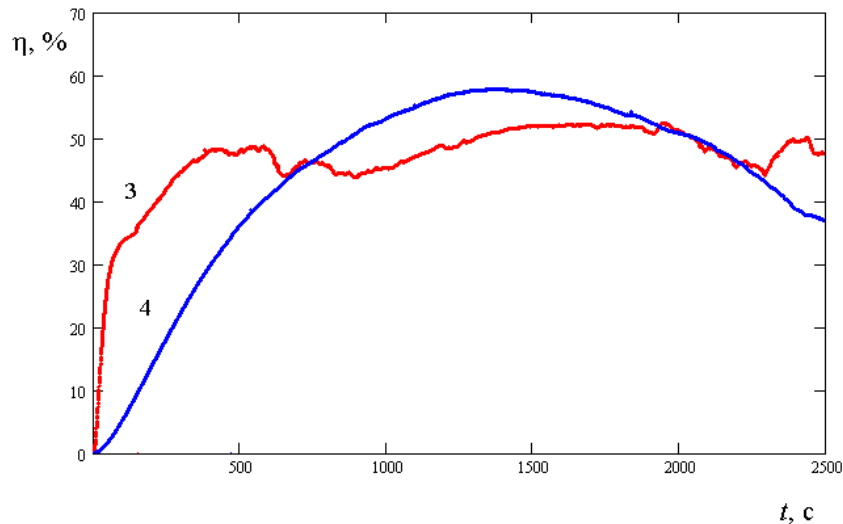


Рисунок 3.4 – Временная зависимость дифракционной эффективности динамической фоторефрактивной решетки, формируемой в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 3 и № 4 лазерными пучками с длиной волны 532 нм, для считывающего пучка с длиной волны 655 нм. Поляризация формирующих пучков и считывающего пучка соответствует обыкновенным волнам

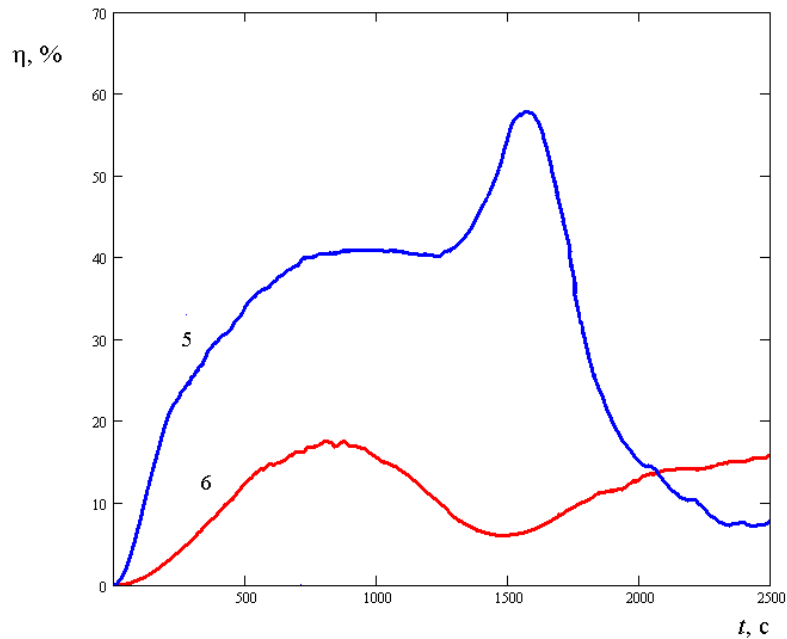


Рисунок 3.5 – Временная зависимость дифракционной эффективности динамической фоторефрактивной решетки, формируемой в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 и № 6 лазерными пучками с длиной волны 532 нм, для считывающего пучка с длиной волны 655 нм. Поляризация формирующих пучков и считывающего пучка соответствует необыкновенным волнам

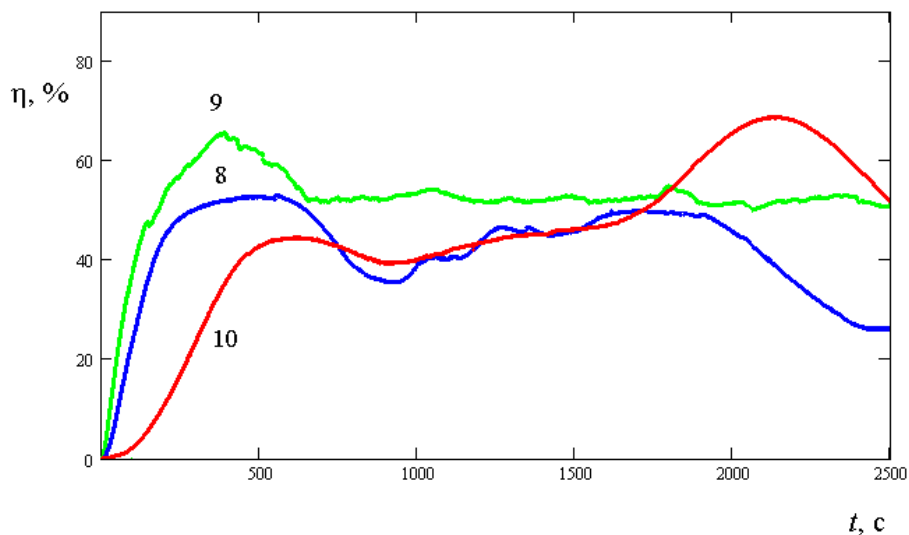


Рисунок 3.6 – Временные зависимости дифракционной эффективности динамических фоторефрактивных решеток, формируемых в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 8, № 9 и № 10 лазерными пучками с длиной волны 532 нм, для считывающего пучка с длиной волны 655 нм. Поляризация формирующих пучков и считывающего пучка соответствует обыкновенным волнам

Как видно из рисунков 3.4–3.6, максимальной скоростью роста дифракционной эффективности на начальном участке характеризуются образцы с объемным легированием № 8 и № 9, а также поверхностно легированная структура $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 3. Характерной особенностью образцов № 8 и № 9, как отмечалось выше, является высокая концентрация ионов меди в зарядовом состоянии Cu^+ , которая должна приводить к высоким значениям фотовольтаической постоянной β_{31} (см. например работу [115]), определяющей скорость роста дифракционной эффективности на начальном участке [61]. Кроме того, значительная толщина данных образцов (5,0 и 2,0 мм, соответственно, см. таблицу 3.1) также способствует высокой начальной скорости фоторефрактивного отклика. При формировании структуры $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 3 использовалось время диффузии, составляющее 20 час (см. таблицу 2.1), что позволяет предположить значительную толщину легированного Cu поверхностного слоя, превышающего значения $\Delta x = 316$ и 221 мкм для образцов № 5 и № 6 (см. подразд. 2.4) соответственно. Следует отметить, что образец № 3 не имел полированных граней, перпендикулярных оси Z , что не позволило для него определить вид профиля концентрации ионов меди и оценить его толщину Δx .

Из рисунков 3.4 и 3.6 следует, что в образцах № 4 (поверхностное легирование) и № 10 (объемно-легированный кристалл) наблюдается максимальная дифракционная эффективность фоторефрактивной решетки, составляющая 57 % и 68 %, соответственно, а для достижения эффективности $\eta = 10$ %, при формирующих световых пучках с длиной волны 532 нм и интенсивностью ~ 637 мВт/см², соответствующих обыкновенным волнам, требуется время, составляющее около 160 с. При формировании структуры $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 4 использовалась технология магнетронного напыления, причем толщина пленки Cu составляла 900 нм при толщине подложки $d = 1,8$ мм (см. таблицу 2.1), что позволило при времени диффузии 9 час достичь для неё высоких значений концентрации ионов как Cu^+ , так и Cu^{2+} .

Для образцов № 5 и № 6 с толщиной $d = 1,2$ мм, полученных диффузионным легированием в течение 9 часов из пленок, сформированных термическим и ионно-магнетронным напылением, соответственно, достигаемые значения дифракционной эффективности при считывании необыкновенными волнами составляли $\sim 55\%$ и $\sim 17\%$.

3.3 Формирование фоторефрактивных решеток излучением с длиной волны 532 нм в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза на начальном участке

Как отмечалось в работе автора [100], экспериментальные временные зависимости дифракционной эффективности фоторефрактивной решетки на начальном этапе её формирования удовлетворительно аппроксимируются следующей степенной функцией:

$$\eta_{in}(t) = bt^2 + ct^3, \quad (3.3)$$

с коэффициентами b и c , которые могут быть определены подгонкой под экспериментальные данные с использованием метода наименьших квадратов [116]. Результаты такой аппроксимации представлены сплошными кривыми на рисунках 3.7–3.9 для образцов № 4 – № 6, полученных поверхностным легированием, и на рисунках 3.10 и 3.11 – для объемно-легированных образцов № 8 и № 9.

Полученные при подгонке под экспериментальные данные параметры аппроксимации b и c для образцов № 4 – № 6 и № 8 и № 9, а также интенсивности записывающих пучков и типы волн, используемых при записи и мониторинге дифракционной эффективности формируемых динамических фоторефрактивных решеток, представлены в таблице 3.2.

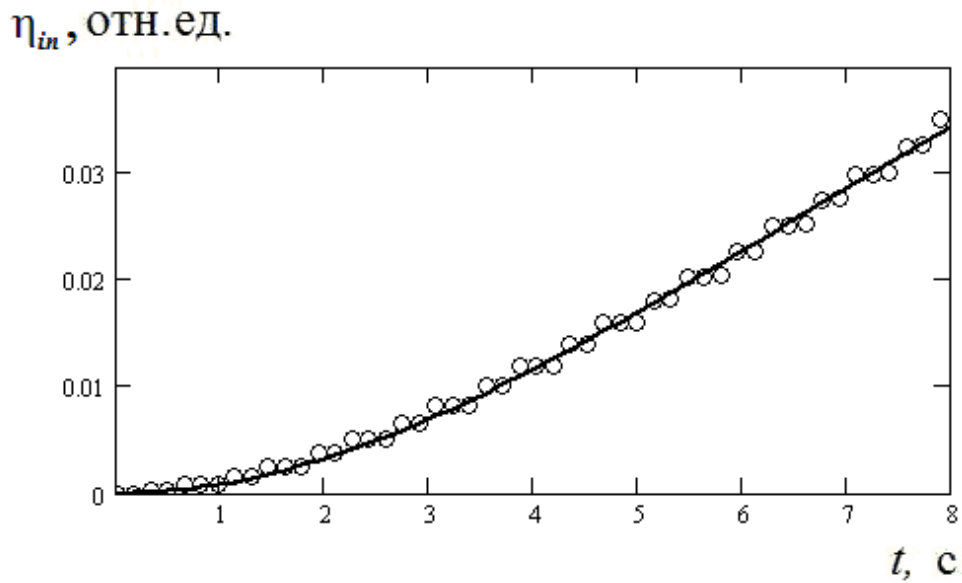


Рисунок 3.7 – Временная зависимость дифракционной эффективности для динамической фоторефрактивной решетки на начальном участке её формирования в образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 4 по экспериментальным данным, представленным на рисунке 3.4. Точки – эксперимент, сплошная кривая – расчет по формуле (3.3)

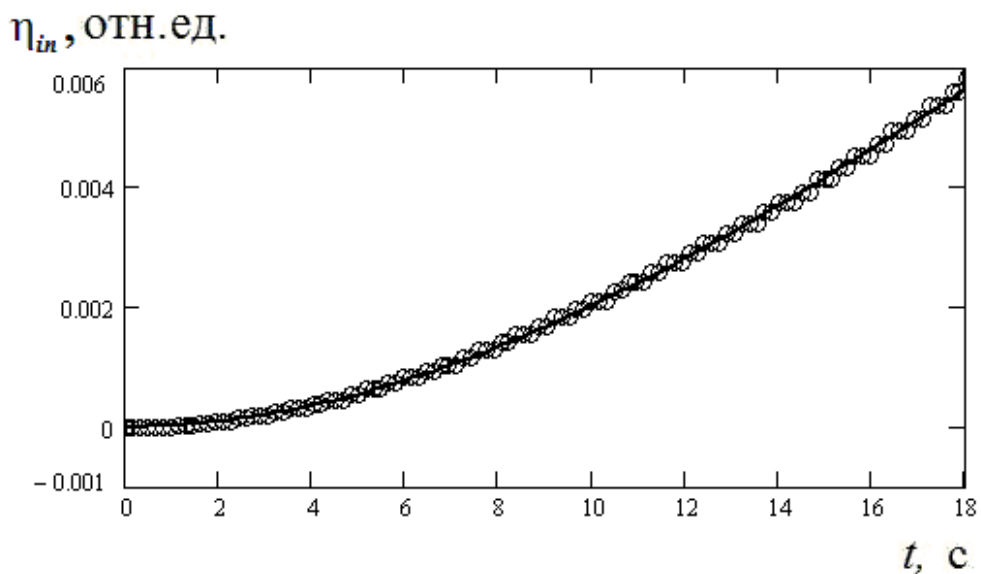


Рисунок 3.8 – Временная зависимость дифракционной эффективности для динамической фоторефрактивной решетки на начальном участке её формирования в образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 по экспериментальным данным, представленным на рисунке 3.5. Точки – эксперимент, сплошная кривая – расчет по формуле (3.3)

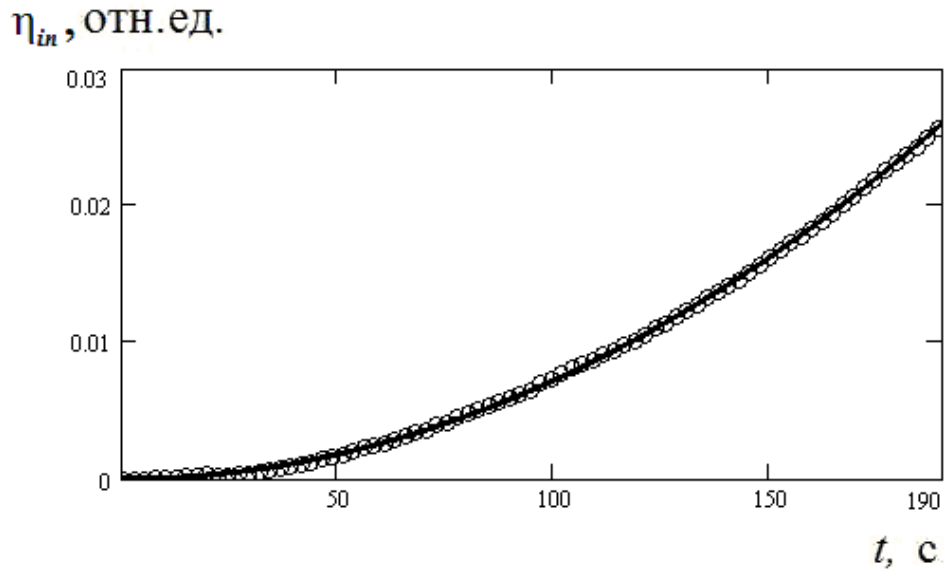


Рисунок 3.9 – Временная зависимость дифракционной эффективности для динамической фоторефрактивной решетки на начальном участке её формирования в образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 6 по экспериментальным данным, представленным на рисунке 3.5. Точки – эксперимент, сплошная кривая – расчет по формуле (3.3)

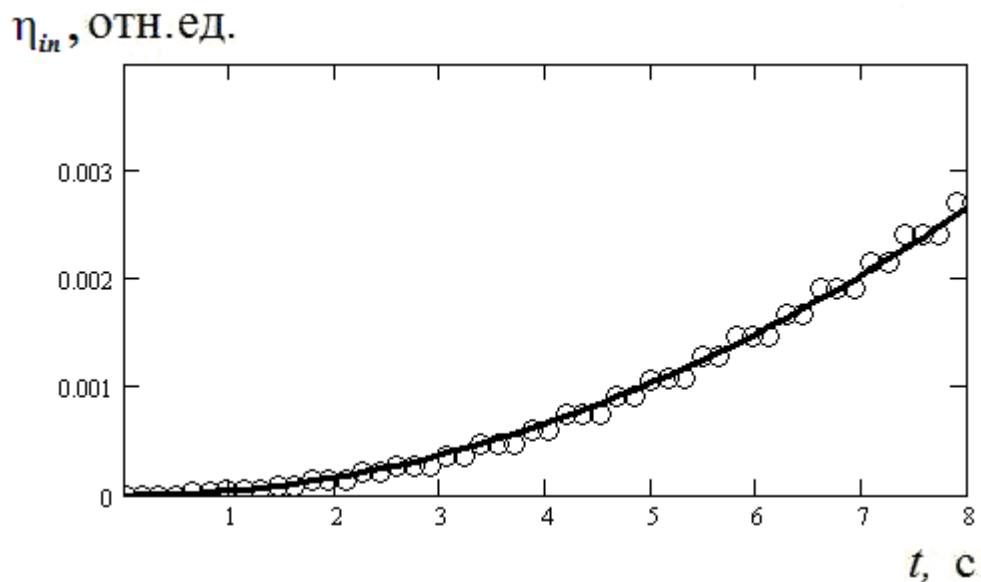


Рисунок 3.10 – Временная зависимость дифракционной эффективности для динамической фоторефрактивной решетки на начальном участке её формирования в образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 8 по экспериментальным данным, представленным на рисунке 3.6. Точки – эксперимент, сплошная кривая – расчет по формуле (3.3)

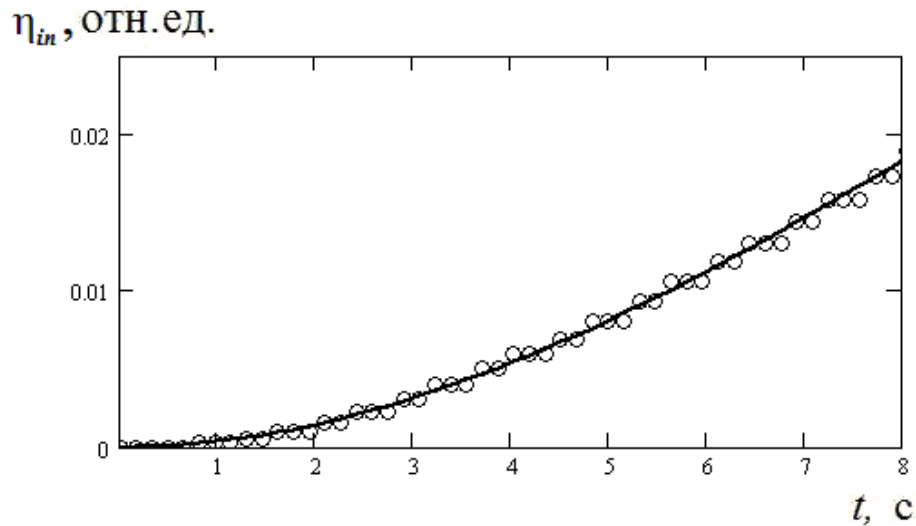


Рисунок 3.11 – Временная зависимость дифракционной эффективности для динамической фоторефрактивной решетки на начальном участке её формирования в образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 9 по экспериментальным данным, представленным на рисунке 3.6. Точки – эксперимент, сплошная кривая – расчет по формуле (3.3)

Таблица 3.2 – Параметры b и c , характеризующие динамику записи фоторефрактивных решеток в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза пучками с длиной волны 532 нм и её условия, при считывании лазерным пучком с длиной волны 655 нм

Номер образца	$b, \text{с}^{-2}$	$c, \text{с}^{-3}$	$J_{p1} \approx J_s, \text{мВт/см}^2$	Тип записывающих и считывающих волн
4	$921 \cdot 10^{-6}$	$4,8 \cdot 10^{-5}$	318	обыкновенные
5	$24 \cdot 10^{-6}$	$3,6 \cdot 10^{-5}$	64	необыкновенные
6	$0,727 \cdot 10^{-6}$	$2,7 \cdot 10^{-11}$	64	необыкновенные
8	$41,7 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-6}$	318	обыкновенные
9	$388 \cdot 10^{-6}$	$1,27 \cdot 10^{-5}$	318	обыкновенные

Сравнение динамики формирования фоторефрактивных решеток на начальном участке в образцах с поверхностным легированием (рисунки 3.7–3.9) и в объемно-легированных пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ показывает, что она имеет в них качественно одинаковый характер. Для количественного анализа параметров b и c (см. таблицу 3.2), описывающих её поведение в образцах с поверхностным

легированием, необходимо развитие теоретической модели, принимающей во внимание влияние неоднородности распределения ионов Cu на величину поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки и эффективность дифракции на ней считывающего пучка.

3.4 Динамика формирования поля пространственного заряда в пластинах LiNbO₃:Cu X-среза

При анализе формирования поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки воспользуемся приближениями заданной интенсивности света $J(x, z)$ в интерференционной картине, формируемой записывающими пучками в разомкнутом вдоль оси z кристалле:

$$\begin{aligned} J(x, z) &= J_0 \exp\left(-\int_0^x \alpha_w(x') dx'\right) \left[1 + m \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda} z\right)\right] = \\ &= J_0 \exp\left(-\frac{\sqrt{\pi}}{2} k_m \Delta x \operatorname{erf}\left(\frac{x}{\Delta x}\right)\right) \left[1 + m \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda} z\right)\right], \end{aligned} \quad (3.4)$$

где J_0 – суммарная интенсивность записывающих пучков на входной грани кристалла, а интеграл в показателе экспоненты учитывает зависимость показателя поглощения записывающих пучков α_w от координаты x в образцах с поверхностным легированием и может быть выражен через функцию ошибок (см. подразд. 2.4).

В пренебрежении диффузионным механизмом перераспределения поля пространственного заряда и в приближении медленных изменений всех рассматриваемых функций вдоль координаты x ($\partial J / \partial x \ll \partial J / \partial z$, $\partial \vec{E} / \partial x \ll \partial \vec{E} / \partial z$, и т.д.), система уравнений для концентраций ионизированных доноров $N_D^+(x, z)$, электронов в зоне проводимости $n(x, z)$ и для преобладающей компоненты электрической напряженности поля пространственного заряда $E_z(x, z) = E(x, z)$

может быть получена из общих уравнений, соответствующих монополярной одноуровневой модели зонного переноса [62], в следующем виде:

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = s_w J (N_D - N_D^+) - \gamma n N_D^+, \quad (3.5)$$

$$\varepsilon_3 \frac{\partial E}{\partial z} + e \mu n E + G s_w \hbar \omega_w J (N_D - N_D^+) = 0, \quad (3.6)$$

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{e}{\varepsilon_3} (N_D^+ - N_A - n), \quad (3.7)$$

где s_w – сечение фотоионизации доноров для записывающего излучения и N_D – их полная локальная концентрация, зависящая от координаты x ; N_A – локальная концентрация компенсирующих акцепторов, также являющаяся функцией x ; ε_3 – статическая диэлектрическая проницаемость кристалла для поля вдоль полярной оси z ; μ – подвижность электронов вдоль данной оси; G – константа Гласса, характеризующая фотовольтаическую активность примеси в соответствующей кристаллической решетке [28] (в рассматриваемом случае – Cu^+ в LiNbO_3), зависящая также от поляризации света, формирующего фоторефрактивную решетку; $\hbar \omega_w$ – энергия кванта записывающего излучения и γ – коэффициент двухчастичной рекомбинации.

Выражая из формулы (3.5) концентрацию ионизированных доноров в виде

$$N_D^+ = N_A + n + \frac{\varepsilon_3}{e} \frac{\partial E}{\partial z}, \quad (3.8)$$

подставляя результат в (3.6) и используя приближения низкой интенсивности света и адиабатического следования концентрации электронов в зоне проводимости её изменениям, когда выполняются условия $n \ll N_A$ и $\partial n / \partial t = 0$, соответственно, получаем

$$n = \frac{s_w I \left(N_D - N_A - \frac{\varepsilon_3}{e} \frac{\partial E}{\partial z} \right) - \frac{\varepsilon_3}{e} \frac{\partial^2 E}{\partial t \partial z}}{\gamma \left(N_A + \frac{\varepsilon_3}{e} \frac{\partial E}{\partial z} \right)}. \quad (3.9)$$

Подставляя n из (3.7) и N_D^+ из (3.8) в уравнение (3.6) и учитывая неравенство $n \ll N_A$, находим следующее нелинейное дифференциальное уравнение, определяющее динамику формирования поля пространственного заряда $E(x, z, t)$ в пластине $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$:

$$\frac{\partial E}{\partial t} + \frac{e\mu}{\varepsilon_3} \frac{s_w J \left(N_D - N_A - \frac{\varepsilon_3}{e} \frac{\partial E}{\partial z} \right) - \frac{\varepsilon_3}{e} \frac{\partial^2 E}{\partial t \partial z}}{\gamma \left(N_A + \frac{\varepsilon_3}{e} \frac{\partial E}{\partial z} \right)} E + \frac{G s_w \hbar \omega_w}{\varepsilon_3} \left(N_D - N_A - \frac{\varepsilon_3}{e} \frac{\partial E}{\partial z} \right) J = 0. \quad (3.10)$$

В исследуемых образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ концентрация компенсирующих акцепторов равна концентрации ловушечных центров,

$$N_A(x) = C_{\text{Cu}^{2+}}(x), \quad (3.11)$$

а полная концентрация доноров – следующей сумме:

$$N_D(x) = C_{\text{Cu}^{2+}}(x) + C_{\text{Cu}^+}(x), \quad (3.12)$$

где в кристаллах с объемным легированием эти величины являются постоянными и для образца № 10 могут быть найдены из таблицы 3.1, в то время как для поверхностно-легированных образцов № 5 и № 6 они должны определяться из формулы (2.5), а для образца № 7 – из формулы (2.7), с учетом параметров распределений примеси, приведенных для них выше в подразд. 2.4. Расчет показывает, что для предельно достижимой амплитуды поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки с пространственным периодом $\Lambda = 2,5$ мкм, равной типичному значению фотовольтаического поля E_{phv} для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с однородным объемным легированием, составляющему около 10^7 В/м [27], определяющий эффект насыщения ловушек член в уравнении (3.10) может быть оценен как $(\varepsilon_3/e)(\partial E / \partial z) \sim (\varepsilon_3/e)(2\pi / \Lambda)E_{phv} \approx 4 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$. Поэтому на основании соотношений (3.11) и (3.12) и параметров исследованных образцов

№ 3 – № 7 (см. таблицу 2.1) и № 8 – № 10 (см. таблицу 3.1) можно полагать для них выполняющимися условия $(\epsilon_3/e)(\partial E / \partial z) \ll N_D - N_A, N_A$.

Для оценки значений сечения фотоионизации доноров для записывающего излучения s_w исследуемых образцов учтем, что основной вклад в поглощение на длине волны $\lambda_w = 532$ нм связан с фотовозбуждением электронов с неионизированных донорных центров Cu^+ в зону проводимости. Вследствие этого соответствующий показатель поглощения определяется выражением [26]

$$k_{532}(x) = \hbar\omega_w s_w [N_D(x) - N_A(x)] = \hbar\omega_w s_w C_{\text{Cu}^+}(x). \quad (3.13)$$

Для приведенных в подразд. 2.4 значений k_m и $C_{\text{Cu}^+}^m$ из (3.13) находим, что $s_w \approx 2,0 \cdot 10^{-4}$ м²/Дж для образца № 5 и $s_w \approx 2,7 \cdot 10^{-4}$ м²/Дж для образца № 6. Наблюдаемое различие в значениях сечения фотоионизации доноров для данных образцов может быть связано с ошибками эксперимента и отклонениями реальных распределений ионов меди в диффузионном слое от функций Гаусса.

Найденные значения для s_w позволяют найти скорость фотоионизации доноров, $s_w J_0 \approx 0,5$ с⁻¹, существенно превышающую скорость нарастания амплитуды поля пространственного заряда на начальном участке, которую можно оценить с использованием (3.3), например, для образца № 5 (см. таблицу 3.2), как $\partial E / \partial t = \sqrt{\eta_{in}(t)} = \sqrt{b} \approx 0,5 \cdot 10^{-3}$ с⁻¹. Поэтому в уравнении (3.10) можно пренебречь также вторым слагаемым в числителе второго члена в левой части, и привести его к следующему упрощенному виду:

$$\frac{\partial E}{\partial t} + \frac{e\mu}{\epsilon_3} \frac{s_w J (N_D - N_A)}{\gamma N_A} E + \frac{G s_w \hbar \omega_w}{\epsilon_3} (N_D - N_A) J = 0. \quad (3.14)$$

Для начального условия $E(x, z, 0) = 0$, соответствующего включению записывающих световых пучков при $t = 0$, решение (3.14) с учетом (3.4) можно записать в следующем виде:

$$E(x, z, t) = -\frac{G\hbar\omega_w\gamma N_A(x)}{e\mu} \left\{ 1 - \exp\left[-\frac{t}{\tau(x)}\right] \exp\left[-\frac{mt}{\tau(x)} \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda} z\right)\right] \right\}, \quad (3.15)$$

где зависящее от координаты x время релаксации с использованием (3.11) и (3.12) может быть записано в виде

$$\frac{1}{\tau(x)} = \frac{e\mu s_w C_{Cu^+}^m}{\varepsilon_3 \gamma C_{Cu^{2+}}^m} J_0 \exp\left[-\frac{\sqrt{\pi}}{2} k_m \Delta x \operatorname{erf}\left(\frac{x}{\Delta x}\right)\right]. \quad (3.16)$$

Из (3.15) и (3.16) следует, что формирующееся в пластине $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с диффузионным легированием поле пространственного заряда фоторефрактивной решетки представляет собой суперпозицию пространственных гармоник вида

$$E_{sc}^{(n)}(x, z, t) = E_n(x, t) \cos(2\pi n / \Lambda), \quad (3.17)$$

с номерами $n = 0, 1, 2, \dots$ и амплитудами $E_n(x, t)$, которые могут быть найдены с использованием разложения последнего экспоненциального множителя в (3.15) в ряд по модифицированным функциям Бесселя n -го порядка, $I_n(mt/\tau(x))$. Эффективность дифракции Брэгга на фоторефрактивной решетке определяется амплитудой первой пространственной гармоники, аналитическое выражение для которой может быть найдено из (3.15) и (3.11) как

$$E_1(x, t) = -E_{phv}^m \exp\left(-\frac{x^2}{\Delta x^2}\right) I_1\left(\frac{mt}{\tau(x)}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau(x)}\right), \quad (3.18)$$

где максимальное фотовольтаическое поле, соответствующее входной грани пластины $x = 0$, описывается выражением

$$E_{phv}^m = \frac{2G\hbar\omega_w\gamma}{e\mu} C_{Cu^{2+}}^m. \quad (3.19)$$

Характерно, что нарастание амплитуды поля первой пространственной гармоники во времени на начальном участке, при $t \ll \tau(x)$, происходит, как следует из (3.18), (3.19) и (3.16), по линейному закону, с сохранением пространственной зависимости от координаты x :

$$E_1^{in}(x,t) = -mJ_0 \frac{G\hbar\omega_w s_w C_{Cu^+}^m}{\varepsilon_3} \exp\left(-\frac{x^2}{\Delta x^2}\right) \exp\left(-\frac{\sqrt{\pi}}{2} k_m \Delta x \operatorname{erf}\left(\frac{x}{\Delta x}\right)\right) t. \quad (3.20)$$

3.5 Эффективность дифракции считывающего светового пучка на фоторефрактивной решетке в пластине $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ для начального участка записи

Как следует из рисунков 3.7–3.11, эффективность дифракции считывающего пучка с длиной волны $\lambda_r = 655$ нм на начальном участке характеризуется малыми значениями, не превосходящими $4 \cdot 10^{-2}$. Поэтому при её теоретическом рассмотрении изменением амплитуды считывающей волны за счет преобразования в дифрагированный пучок можно пренебречь. Используя известные соотношения [25, 26, 122] и учитывая малость угла Брэгга, рассмотрим дифракцию считывающего пучка, пренебрегая также его оптическим поглощением, на первой пространственной гармонике возмущений необыкновенного или обыкновенного показателя преломления с амплитудой $\Delta n_e^{in}(x,t)$ или $\Delta n_o^{in}(x,t)$, соответственно, создаваемых записывающими пучками в пластине $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ на начальном участке:

$$\Delta n_e^{in}(x,t) = -\frac{n_e^3 r_{33}}{2} E_1^{in}(x,t), \quad (3.21)$$

$$\Delta n_o^{in}(x,t) = -\frac{n_o^3 r_{13}}{2} E_1^{in}(x,t), \quad (3.22)$$

где n_e и n_o – необыкновенный и обыкновенный показатели преломления невозмущенного кристалла и r_{33} , r_{13} – его соответствующие электрооптические постоянные. В приближении неистоающего считывающего пучка с постоянной амплитудой светового поля A_{re} или A_{ro} , амплитуда дифрагированной световой волны $A_{de}^{in}(x,t)$ (или $A_{do}^{in}(x,t)$) определяется следующими уравнениями связанных волн:

$$\frac{\partial A_{de}^{in}}{\partial x} = i \frac{2\pi n_e^3 r_{33}}{\lambda_r} E_1^{in}(x,t) A_{re} \exp(i\Delta k_e x), \quad (3.23)$$

$$\frac{\partial A_{do}^{in}}{\partial x} = i \frac{2\pi n_o^3 r_{13}}{\lambda_r} E_1^{in}(x,t) A_{ro} \exp(i\Delta k_o x), \quad (3.24)$$

где зависимость параметра фазового рассогласования $\Delta k_{e,o}$ от угла θ_i между волновым вектором считывающего пучка и осью X в кристалле может быть представлена в виде

$$\Delta k_{e,o} = \frac{2\pi}{\Lambda \cos \theta_i} \left(\sin \theta_i - \frac{\lambda_r}{2n_{e,o}\Lambda} \right). \quad (3.25)$$

При точном выполнении условия Брэгга $\Delta k_{e,o} = 0$ и для возмущений вида (3.21)–(3.22), с использованием (3.20), амплитуда дифрагированной световой волны $A_{do,de}^{in}(d,t)$ на выходной грани пластины $x = d$ в брэгговском режиме может быть получена из уравнений связанных волн, (3.23) или (3.24), в следующем виде:

$$A_{de}^{in}(d,t) = -i \frac{\pi n_e^3 r_{33}}{2\lambda_r} \frac{G_e \hbar \omega_w s_w C_{Cu^+}^m m J_0}{\epsilon_3} d_{eff}^{in} t A_{re}, \quad (3.26)$$

$$A_{do}^{in}(d,t) = -i \frac{\pi n_o^3 r_{13}}{2\lambda_r} \frac{G_o \hbar \omega_w s_w C_{Cu^+}^m m J_0}{\epsilon_3} d_{eff}^{in} t A_{ro}, \quad (3.27)$$

с эффективной длиной взаимодействия в диффузионном слое на начальном участке записи, определяемой интегралом

$$d_{eff}^{in} = \int_0^d \exp\left(-\frac{x^2}{\Delta x^2}\right) \exp\left(-\frac{\sqrt{\pi}}{2} k_m \Delta x \operatorname{erf}\left(\frac{x}{\Delta x}\right)\right) dx, \quad (3.28)$$

где G_e и G_o – константы Гласса для записывающих необыкновенных и обыкновенных волн с $\lambda_w = 532$ нм. Формулы (3.26) и (3.27) выведены в предположении, что при записи и считывании фоторефрактивных решеток используются волны одного типа, необыкновенные или обыкновенные.

Таким образом, временные зависимости эффективности дифракции для необыкновенного и обыкновенного считывающих пучков, на начальном участке фотовольтаического формирования фоторефрактивной решетки в пластине X-среза $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с диффузионным легированием, описываются следующей квадратичной зависимостью:

$$\tilde{\eta}_{ine}(t) = \left(\frac{\pi n_e^3 r_{33}}{2\lambda_r} \frac{G_e \hbar \omega_w s_w C_{\text{Cu}^+}^m m J_0}{\varepsilon_3} d_{eff}^{in} \right)^2 t^2, \quad (3.29)$$

$$\tilde{\eta}_{ino}(t) = \left(\frac{\pi n_o^3 r_{13}}{2\lambda_r} \frac{G_o \hbar \omega_w s_w C_{\text{Cu}^+}^m m J_0}{\varepsilon_3} d_{eff}^{in} \right)^2 t^2. \quad (3.30)$$

Для описания динамики дифракционной эффективности фоторефрактивных решеток на начальном участке в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с объемным легированием (№ 8, № 9) в формулах (3.26)–(3.30) достаточно заменить эффективную толщину кристалла d_{eff}^{in} на значения толщин d данных образцов, приведенных в таблице 3.1.

3.6 Определение констант Гласса образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с поверхностным и объемным легированием по динамике дифракционной эффективности на начальном участке

Сравнение уравнения (3.3) с (3.29) и использование (3.28) позволяет оценить эффективную длину взаимодействия в диффузионном слое на начальном участке записи d_{eff}^{in} и константу Гласса G_e для необыкновенных волн с $\lambda_w = 532$ нм, которая может быть рассчитана из соотношения

$$G_e = \frac{2\varepsilon_3 \lambda_r \sqrt{b_e}}{\pi n_e^3 r_{33} \hbar \omega_w s_w C_{\text{Cu}^+}^m m J_0 d_{eff}^{in} (1 - R_e)}, \quad (3.31)$$

где индекс «e» у параметра b_e указывает на его отношение к необыкновенным волнам; R_e – коэффициент отражения по интенсивности для необыкновенных запиывающих пучков от входной грани кристалла, а множитель $(1 - R_e) \approx 0,86$ учитывает её отличие внутри кристалла, при $x = 0$, от измеряемых значений, представленных в таблице 3.2. В расчетах, проведенных для образцов № 5 и № 6, использовались приведенные выше значения b и $J_0 = J_{p1} + J_s$ (таблица 3.2), контраста $m \approx 1$ (см. подразд. 3.3) и полученные оценки их параметров, как $s_w \approx 2,0 \cdot 10^{-4}$ и $2,7 \cdot 10^{-4}$ м²/Дж (см. подразд. 3.4); $C_m^{\text{Cu}^+} = 7,80 \cdot 10^{24}$ и $4,64 \cdot 10^{24}$ м⁻³, $k_m = 5,82$ и $4,71$ см⁻¹, $\Delta x = 316$ и 221 мкм (см. подразд. 2.4) соответственно; а также данные по их толщине $d = 1,2$ мм (таблица 2.1), по используемым в экспериментах длинам волн λ_r и λ_w и литературные данные по материальным параметрам ниобата лития [25, 28]. Это позволило для образцов № 5 и № 6 оценить эффективную длину взаимодействия в диффузионном слое на начальном участке записи, как $d_{eff}^{in} \approx 0,26$ и $0,19$ мм, и константу Гласса для необыкновенных волн с $\lambda_w = 532$ нм – как $G_e \approx 9,4 \cdot 10^{-12}$ и $2,8 \cdot 10^{-12}$ м/В, соответственно. Следует отметить, что полученные значения констант Гласса для образцов № 5 и № 6 близки по порядку величины к значению, приведенному в [28] для монокристалла LiNbO₃:Cu с объемным легированием, равному $5,5 \cdot 10^{-12}$ м/В.

Для оценки параметров, определяющих динамику формирования фоторефрактивных решеток на начальном участке для образца № 4, воспользуемся для него значением коэффициента диффузии ионов меди $D_{\text{Cu}}^X = 0,58$ мкм²/с, среднему из найденных выше в подразд. 2.4 для образцов № 5, № 6 и № 7, и предположением о гауссовом характере распределения примеси в диффузионном слое, определяемом формулой (2.5). В этом случае параметры распределений примеси и показателя поглощения в образце № 4, с использованием данных, приведенных в таблице 2.1 и на рисунке 2.5, можно

оценить из соотношений (2.8) и (2.6), как $\Delta x = 274$ мкм, $k_m = 33,2$ см⁻¹, $C_m^{\text{Cu}^+} \approx 2,5 \cdot 10^{25}$ и $C_m^{\text{Cu}^{2+}} \approx 1,1 \cdot 10^{26}$ м⁻³. С учетом этих данных для образца № 4 и его толщины $d = 1,8$ мм (см. таблицу 2.1), из (3.13) находим, что $s_w \approx 3,5 \cdot 10^{-4}$ м²/Дж, а из (3.28) – что $d_{\text{eff}}^{\text{in}} \approx 0,17$ мм.

Сравнение (3.3) с (3.30) позволяет получить следующую формулу для оценки константы Гласса G_o в случае обыкновенных записывающих волн:

$$G_o = \frac{2\varepsilon_3 \lambda_r \sqrt{b_o}}{\pi n_o^3 r_{13} \hbar \omega_w s_w C_{\text{Cu}^+}^m m J_0 d_{\text{eff}}^{\text{in}} (1 - R_o)}, \quad (3.32)$$

где R_o – коэффициент отражения по интенсивности для обыкновенных записывающих пучков от входной грани кристалла, а множитель $(1 - R_o) \approx 0,85$ в этом случае. С учетом приведенных выше данных по параметрам образца № 4 и значений b и $J_0 = J_{p1} + J_s$ (см. таблицу 3.2), используемого контраста $m \approx 1$ (см. подразд. 3.3), а также литературных данные по материальным характеристикам ниобата лития [25, 28], из (3.32) находим для него значение константы Гласса для обыкновенных волн с $\lambda_w = 532$ нм, как $G_o \approx 10,3 \cdot 10^{-12}$ м/В, близкое по порядку величины к приведенному в [28] для монокристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с объемным легированием.

При анализе формирования фоторефрактивных решеток в образцах с объемным легированием следует учесть, что концентрация ионов меди C_{Cu^+} и $C_{\text{Cu}^{2+}}$ и показатель оптического поглощения для записывающих пучков α_w в этом случае остаются постоянными по координате x . Распределение интенсивности этих пучков в кристалле может быть получено из (3.4) в следующем виде:

$$J(x, z) = J_0 \exp(-\alpha_w x) \left[1 + m \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda} z\right) \right]. \quad (3.33)$$

Использование (3.33) позволяет найти для динамики распределения поля пространственного заряда $E(x, z, t)$ фоторефрактивной решетки выражение, совпадающее с (3.15), но с постоянным значением концентрации акцепторов, $N_A = C_{Cu^{2+}}$, и со следующей зависимостью времени релаксации от координаты x :

$$\frac{1}{\tau(x)} = \frac{e\mu s_w C_{Cu^+}}{\varepsilon_3 \gamma C_{Cu^{2+}}} J_0 \exp(-\alpha_w x). \quad (3.34)$$

Для нарастания амплитуды поля первой пространственной гармоники во времени на начальном участке, при $t \ll \tau(x)$, вместо (3.20) может быть получено соотношение

$$E_1^{in}(x, t) = -mJ_0 \frac{G\hbar\omega_w s_w C_{Cu^+}}{\varepsilon_3} \exp(-\alpha_w x) t, \quad (3.35)$$

использование которого при анализе дифракции считывающего пучка на рассматриваемой фоторефрактивной решетке позволяет найти для амплитуды дифрагированной световой волны $A_{do,de}^{in}(d, t)$ и для эффективности дифракции $\tilde{\eta}_{ino,e}(t)$ уравнения, совпадающие с (3.26), (3.27) и (3.29), (3.30) соответственно, но с постоянными значениями концентраций C_{Cu^+} и $C_{Cu^{2+}}$ и с эффективной длиной взаимодействия, определяемой выражением

$$d_{eff}^{in} = \int_0^d \exp(-\alpha_w x) dx = \frac{1 - \exp(-\alpha_w d)}{\alpha_w}. \quad (3.36)$$

Экспериментально измеренные значения показателя оптического поглощения обыкновенно поляризованного лазерного пучка с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм для образцов с объемным легированием № 8 и № 9 были получены, как $\alpha_w \approx 8,3$ и 46 см⁻¹ соответственно. Это позволяет найти из (3.36) эффективную толщину для начального участка образца № 8, определяющую его дифракционную эффективность, $d_{eff}^{in} = 1,18$ мм, при реальной толщине $d = 5$ мм

(см. таблицу 3.1). Значительно меньшую эффективную толщину для начального участка, $d_{eff}^{in} = 0,217$ мм, имеет образец № 9 с реальной толщиной $d = 2$ мм.

Расчет значений константы Гласса для обыкновенных волн для образцов № 8 и № 9 может быть проведен с учетом выражения для показателя оптического поглощения в образце с объемным легированием, аналогичного формуле (3.13):

$$\alpha_w = \hbar\omega_w s_w C_{Cu^+}, \quad (3.37)$$

с использованием которого (3.32) преобразуется к виду

$$G_o = \frac{2\varepsilon_3 \lambda_r \sqrt{b_o}}{\pi n_o^3 r_{13} \alpha_w m J_0 d_{eff}^{in} (1 - R_o)}. \quad (3.38)$$

Для приведенных выше значений b и $J_0 = J_{p1} + J_s$ (см. таблицу 3.2), контраста $m \approx 1$ (см. подразд. 3.3), α_w и d_{eff}^{in} , а также литературных данных по материальным параметрам ниобата лития [25, 28], значения констант Гласса для образцов № 8 и № 9 с объемным легированием могут быть найдены как $G_o \approx 2,5 \cdot 10^{-12}$ и $G_o \approx 7,4 \cdot 10^{-12}$ м/В соответственно.

Таким образом, проведенные в подразд. 3.3 исследования динамики дифракционной эффективности на начальном участке и полученные в подразд. 3.5, 3.6 и 3.7 соотношения позволили оценить значения констант Гласса для образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с поверхностным и объемным способами легирования ионами меди. Полученные значения констант Гласса близки по порядку величины к значению, приведенному в [28] для монокристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с объемным легированием, равному $5,5 \cdot 10^{-12}$ м/В.

3.7 Выводы

В настоящей главе представлены результаты работ [96, 98, 100–102], выполненных автором совместно с Н.Н. Смалем, С.М. Шандаровым и другими членами научной группы, по исследованию формирования поля пространственного заряда фоторефрактивных решеток и динамике роста их дифракционной эффективности в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, в том числе и полученных по технологии высокотемпературной диффузии, результаты практической реализации которой рассмотрены в главе 2 диссертации. Основные результаты состоят в следующем.

1. Проведенные экспериментальные исследования роста дифракционной эффективности формируемых фоторефрактивных решеток для образцов № 3 – № 6 и № 8 – № 10 показали, что максимальной скоростью роста дифракционной эффективности на начальном участке характеризуются образцы с объемным легированием № 8 и № 9, а также поверхностно легированная микроструктура $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 3. В микроструктурированном образце № 4 (поверхностное легирование) и образце № 10 (объемно-легированный кристалл) наблюдается максимальная дифракционная эффективность фоторефрактивной решетки, составляющая 57 % и 68 %, соответственно. Для микроструктурированных образцов № 5 и № 6, полученных диффузионным легированием в течение 9 часов из пленок, сформированных термическим и ионно-магнетронным напылением, соответственно, достигаемые значения дифракционной эффективности при считывании необыкновенными волнами составляли ~ 55 % и ~ 17 %.

2. Экспериментальные исследования формирования фоторефрактивных решеток излучением с длиной волны 532 нм в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза на начальном участке позволили определить значения коэффициента b , характеризующего квадратичный во времени рост дифракционной эффективности, для образцов с поверхностным (№ 4, № 5 и № 6) и объемным (№ 8 и № 9) легированием. Сравнение динамики формирования

фоторефрактивных решеток на начальном участке в исследованных образцах показывает, что она имеет в них качественно одинаковый характер.

3. Проведенный в приближении заданной интенсивности света и в пренебрежении эффектом насыщения ловушек анализ динамики формирования поля пространственного заряда в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза позволил для начального условия, соответствующего включению записывающих пучков при $t = 0$, получить аналитическое выражение, описывающее динамику формирования поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки в образцах с неоднородным распределением фотовольтаической примеси, с зависящим от координаты x временем релаксации. С использованием разложения в ряд по модифицированным функциям Бесселя из него получено аналитическое выражение для амплитуды первой пространственной гармоники фоторефрактивной решетки, как для произвольного времени формирования, так и для начального участка, где наблюдается её рост по линейному закону, с сохранением пространственной зависимости от координаты x .

4. Проведен анализ эффективности дифракции считывающего светового пучка на фоторефрактивной решетке в микроструктурированной пластине $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, учитывающий пространственную зависимость от координаты x амплитуды первой пространственной гармоники возмущений показателя преломления, для начального участка фотовольтаической записи. Для случая точного выполнения условия Брэгга получены выражения, описывающие квадратичные временные зависимости эффективности дифракции для необыкновенного и обыкновенного считывающих пучков, включающие эффективную длину взаимодействия в диффузионном слое, определяемую интегральным выражением.

5. Из результатов подгонки полученных теоретических зависимостей по динамике дифракционной эффективности фоторефрактивных решеток под экспериментальные данные проведена оценка эффективной длины взаимодействия в диффузионном слое на начальном участке записи d_{eff}^{in} и констант Гласса G_e и G_o для необыкновенных и обыкновенных волн

с $\lambda_w = 532$ нм для микроструктурированных пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с поверхностным легированием. Получено, что для образцов № 4, № 5 и № 6 эффективные длины взаимодействия имеют значения $d_{eff}^{in} \approx 0,17, 0,26$ и $0,19$ мм, соответственно, существенно меньшие, чем реальная толщина используемых при диффузии Cu пластин LiNbO_3 X-среза, составляющая 1,2 мм. Константы Гласса для необыкновенных волн с $\lambda_w = 532$ нм для образцов № 5 и № 6 были оценены как $G_e \approx 9,4 \cdot 10^{-12}$ и $2,8 \cdot 10^{-12}$ м/В, соответственно, а для обыкновенных волн для образца № 4 – как $G_o \approx 10,3 \cdot 10^{-12}$ м/В. Полученные значения констант Гласса для поверхностно легированных образцов близки по порядку величины к значению, приведенному в [28] для монокристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с объемным легированием, равному $5,5 \cdot 10^{-12}$ м/В.

6. Для образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с объемным легированием получены аналитические выражения, описывающие зависимость времени релаксации фоторефрактивной решетки от координаты x и пространственно-временную зависимость амплитуды первой пространственной гармоники её электрического поля для начального участка, учитывающие сильное поглощение записывающих пучков. Из экспериментально измеренных значений показателя поглощения образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 8 и № 9 с объемным легированием на длине волны $\lambda_w = 532$ нм найдены значения их эффективных толщин для начального участка, $d_{eff}^{in} = 1,18$ и $0,217$ мм, как и для образцов с поверхностным легированием, существенно меньшие, чем реальные толщины, составляющие 5 и 2 мм. Значения констант Гласса для обыкновенных волн с $\lambda_w = 532$ нм для образцов № 8 и № 9, найденные из результатов аппроксимации экспериментальных данных расчетными зависимостями на начальном участке фотовольтаической записи, как $G_o \approx 2,5 \cdot 10^{-12}$ и $G_o \approx 7,4 \cdot 10^{-12}$ м/В, соответственно, близки по порядку величины к известному из [28] значению для монокристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с объемным легированием.

ГЛАВА 4 АГРЕГИРОВАНИЕ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ И МЕТАЛЛИЧЕСКИХ МИКРО- И НАНОЧАСТИЦ НА ПОВЕРХНОСТИ ЛЕГИРОВАННЫХ МЕДЬЮ КРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ ПРИ ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ

Как отмечалось выше в п. 1.2.3, значительный интерес к генерируемым в приповерхностных областях кристаллов ниобата и танталата лития за счет фотогальванического эффекта пространственно-неоднородным полям связан с задачей создания оптически управляемых манипуляторов микро- и наночастицами (оптических пинцетов). Данный вид манипуляторов относится к фотоэлектрически управляемым ловушкам микрочастиц и был назван фотогальваническим пинцетом [55]. Метод фотогальванического пинцета для захвата и манипулирования объектами по сравнению с традиционными оптическими манипуляторами позволяет неоднократно использовать монокристаллическую подложку и свести к минимуму вред от перегрева захватываемых частиц за счёт использования маломощного источника излучения. Методы структурирования микро- и наночастиц на поверхности легированных кристаллов ниобата лития при лазерном облучении требуют дальнейшего изучения и нуждаются в оптимизации для обеспечения высокого качества картин агрегации микро- и наночастиц. Поверхностный характер электрических полей, используемых при реализации фотовольтаических пинцетов, делает перспективным использование для их реализации кристаллов ниобата лития с поверхностным легированием ионами меди по технологии высокотемпературной диффузии, результаты практической реализации которой рассмотрены выше в главе 2 диссертации. Проведенные в главе 3 диссертации исследования формирования поля пространственного заряда фоторефрактивных решеток и динамике роста их дифракционной эффективности при высоких контрастах записывающей интерференционной картины в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, как созданных по реализованной технологии, так и с объемным легированием,

позволили оценить параметры изученных образцов, определяющие формирующиеся электрические поля.

В настоящей главе представлены результаты работ автора [119, 120, 123], выполненных совместно с Татьянниковым А.И., Шандаровым С.М. и другими членами научной группы, по моделированию динамики поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, основанные на результатах главы 3 диссертации, и по исследованию фотовольтаического агрегирования микро- и наночастиц на поверхности образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, как микроструктурированных, сформированных методом высокотемпературной диффузии из металлических пленок меди, так и изготовленных из объемно-легированных медью кристаллов ниобата лития.

4.1 Моделирование динамики поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза

Уравнение (3.18), совместно с формулами (3.16) и (3.19), полученными выше в подразд. 3.4, позволяет рассчитать временную зависимость амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля на различных глубинах x слоя с диффузионным легированием, в том числе и на границе $x = 0$, на которой и происходит исследованная в [21, 53, 55, 117–121] управляемая агрегация микро- и нанообъектов. Неизвестными параметрами диффузионного слоя исследуемых образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ в (3.16) и (3.19) являются подвижность электронов в зоне проводимости вдоль полярной оси μ и коэффициент двухчастичной рекомбинации γ . Будем полагать, во-первых, что подвижность электронов не зависит от концентрации ионов Cu и типа легирующей примеси и одинакова для всех образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, и воспользуемся приведенным в [121] для кристаллов LiNbO_3 значением $\mu = 7,4 \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{В} \cdot \text{с}$. Во-вторых, учитывая типичные значения фотовольтаического поля для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с однородным объемным легированием, составляющее около 10^7 В/м [27], зададимся значением

коэффициента двухчастичной рекомбинации $\gamma = 2,6 \cdot 10^{-13}$ м³/с. В этом случае из формулы (3.19) для образца № 5 получаем величину максимального фотовольтаического поля $E_{phv}^m \approx 10^7$ В/м, которая в идеале должна определять стационарную амплитуду поля пространственного заряда формирования фоторефрактивной решетки в кристаллах с объемным легированием. Однако следует отметить, что для микроструктурированных образцов № 4 и № 6 при данных значениях подвижности электронов $\mu = 7,4 \cdot 10^{-5}$ м²/В·с и коэффициента двухчастичной рекомбинации $\gamma = 2,6 \cdot 10^{-13}$ м³/с расчет по формуле (3.19) приводит к максимальному фотовольтаическому полю $E_{phv}^m \approx 1,9 \cdot 10^7$ и $0,37 \cdot 10^7$ В/м, соответственно.

Результаты численного моделирования по формуле (3.18), с учетом соотношений (3.16) и (3.19), отражающие временную эволюцию амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля на различных глубинах x слоя с диффузионным легированием для образцов № 4, № 5 и № 6, представлены на рисунках 4.1, 4.2 и 4.3, соответственно, для значений входной интенсивности записывающих пучков $J_{p1} \approx J_s$, приведенных в таблице 3.2. В расчетах использовались найденные для этих образцов значения параметров диффузионного слоя (см. подразд. 2.4 и подразд. 3.6), данные по которым сведены в таблицу 4.1, и известные литературные сведения по материальным характеристикам ниобата лития [25, 28].

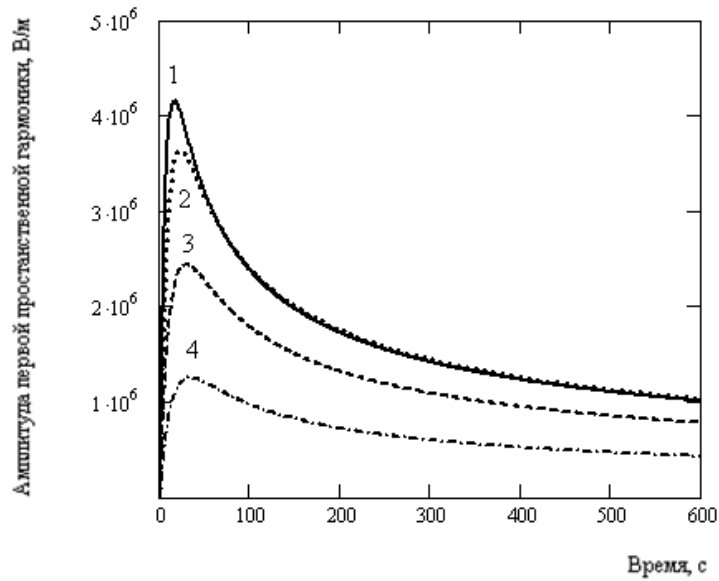


Рисунок 4.1 – Временная зависимость амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной решетки в микроструктурированной пластине № 4 $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с диффузионным легированием на глубинах $x = 0$ (1), 100 (2), 200 (3) и 300 мкм (4), рассчитанная для суммарной входной интенсивности записывающих пучков $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$

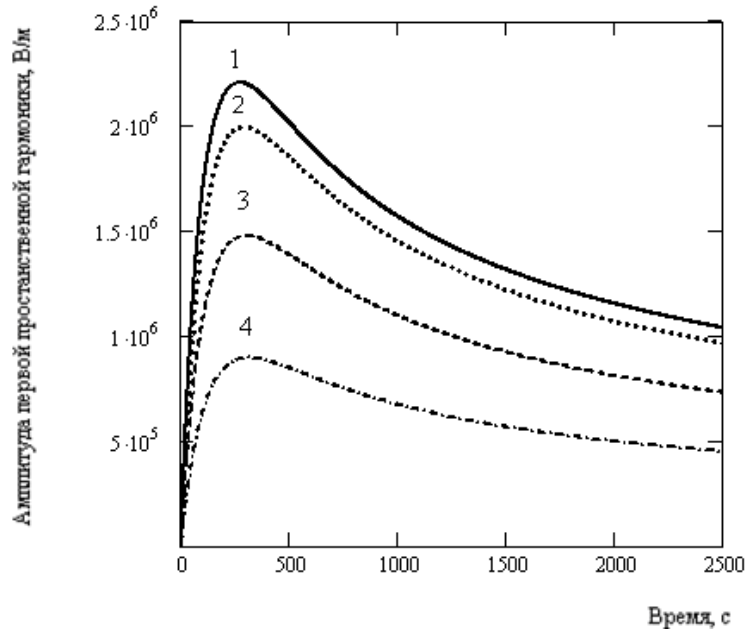


Рисунок 4.2 – Временная зависимость амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной решетки в микроструктурированной пластине № 5 $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с диффузионным легированием на глубинах $x = 0$ (1), 100 (2), 200 (3) и 300 мкм (4), рассчитанная для суммарной входной интенсивности записывающих пучков $J_0 = 128 \text{ мВт/см}^2$

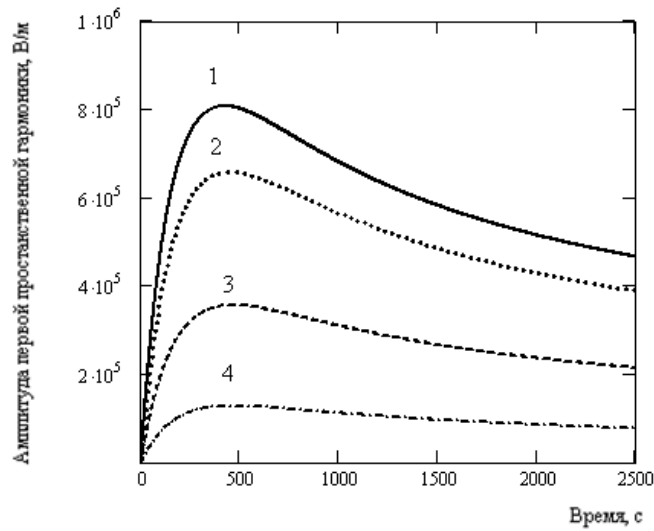


Рисунок 4.3 – Временная зависимость амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной решетки в микроструктурированной пластине № 6 $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с диффузионным легированием на глубинах $x = 0$ (1), 100 (2), 200 (3) и 300 мкм (4), рассчитанная для суммарной входной интенсивности записывающих пучков $J_0 = 128 \text{ мВт/см}^2$

Таблица 4.1 – Параметры образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, полученных поверхностным диффузионным легированием

Номер и толщина образца, подложка	k_m , см^{-1}	Δx , мкм	s_w , $\text{м}^2/\text{Дж}$	$C_{\text{Cu}^+}^m$, м^{-3}	$C_{\text{Cu}^{2+}}^m$, м^{-3}	$d_{\text{eff}}^{\text{in}}$, мм	Константа Гласса, м/В
4 1,8 мм LiNbO_3	33,2	274	$3,5 \cdot 10^{-4}$	$2,5 \cdot 10^{25}$	$1,1 \cdot 10^{26}$	0,17	$10,3 \cdot 10^{-12}$ (G_o)
5 1,2 мм LiNbO_3	5,82	316	$2,0 \cdot 10^{-4}$	$7,8 \cdot 10^{24}$	$6,5 \cdot 10^{25}$	0,26	$9,4 \cdot 10^{-12}$ (G_e)
6 1,2 мм LiNbO_3	4,71	221	$2,7 \cdot 10^{-4}$	$4,64 \cdot 10^{24}$	$8,1 \cdot 10^{25}$	0,19	$2,8 \cdot 10^{-12}$ (G_e)

Как следует из рисунков 4.1–4.3, в рамках используемой модели динамика поля пространственного заряда имеет немонотонный характер. Качественно его немонотонное поведение согласуется с результатами экспериментов по временной зависимости $\eta(t)$ (см. рисунки 3.4 и 3.5) для интервалов времени до

1100 с в образце № 5, до 1400 с – в образце № 6, и до 2500 с – в образце № 4. Однако после этого в образцах № 5 и № 6 наблюдается возрастание эффективности дифракции, не описываемое рассматриваемой моделью. Такие различия во временной эволюции поля пространственного заряда и дифракционной эффективности фоторефрактивной решетки могут быть связаны, в частности, с неприменимостью используемого для анализа приближения заданной интенсивности записывающей интерференционной картины при $\eta(t) > 0,1$. Кроме того, некоторых фотоэлектрические и транспортные параметры перераспределения зарядов в диффузионном слое $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ могут зависеть от концентрации ионов меди, что во внимание не принималась.

Характерная особенность поля пространственного заряда, формирующегося в неоднородном слое $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, состоит в максимально достигаемых при этом напряженностях, существенно меньших, чем величины $E_{phv}^m \approx 10^7$, $1,9 \cdot 10^7$ и $0,37 \cdot 10^7$ В/м, использованные при моделировании для образцов № 5, № 4 и № 6, соответственно. Максимум амплитуды первой пространственной гармоники, в некоторый момент времени t_m составляющий $0,219 E_{phv}^m$, имеет место на границе кристалла $x = 0$. Следует отметить, что коэффициент, определяющий отличие амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля относительно E_{phv}^m в момент времени t_m , при контрасте интерференционной картины $m = 1$ и для $x = 0$ максимален, а его значение может быть найдено из условия экстремума в (3.18), как $I_1(t_m/\tau(0)) \exp(-t_m/\tau(0)) = 0,219$. Таким образом, достигаемые при формировании фоторефрактивных решеток записывающими пучками с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм максимальные значения амплитуды первой пространственной гармоники поля пространственного заряда на поверхности микроструктурированных пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза № 4, № 5 и № 6 с диффузионным легированием можно оценить, как $E_1^{max}(0, t_m) \approx 4,2 \cdot 10^6$, $2,2 \cdot 10^6$ и $0,81 \cdot 10^6$ В/м, соответственно.

Для образцов с объемным легированием № 8 и № 9 аналитическое выражение для временной эволюции первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной решетки $E_1(x, t)$ может быть получено из выражения (3.15) с использованием значения фотовольтаического поля

$$E_{phv} = \frac{2G\hbar\omega_w\gamma}{e\mu} C_{Cu^{2+}}, \quad (4.1)$$

не зависящего от координаты x и определяемое концентрацией ионов меди Cu^{2+} , и разложения последнего экспоненциального множителя в ряд по модифицированным функциям Бесселя n -го порядка, в следующем виде:

$$E_1(x, t) = -E_{phv} I_1\left(\frac{mt}{\tau(x)}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau(x)}\right), \quad (4.2)$$

где зависимость времени релаксации от координаты x дается формулой (3.34), которую с учетом (3.37) можно переписать в виде

$$\frac{1}{\tau(x)} = \frac{e\mu\alpha_w}{\varepsilon_3\gamma C_{Cu^{2+}}\hbar\omega_w} J_0 \exp(-\alpha_w x). \quad (4.3)$$

Использование для образцов с объемным легированием тех же величин подвижности электронов $\mu = 7,4 \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{В}\cdot\text{с}$ и коэффициента двухчастичной рекомбинации $\gamma = 2,6 \cdot 10^{-13} \text{ м}^3/\text{с}$, что и для рассмотренных выше поверхностно-легированных образцов, а также найденных в подразд. 3.2 и 3.6 данных по концентрации ионов меди $C_{Cu^{2+}}$ (см. таблицу 3.1) и по константам Гласса G_o , позволило оценить для пластин $LiNbO_3:Cu$ X-среза № 8 и № 9 значения фотовольтаического поля E_{phv} , приведенные в таблице 4.2. В этой же таблице сведены основные параметры исследуемых образцов № 8 и № 9, используемые, в частности, для численного моделирования динамики поля пространственного заряда при формировании в них фоторефрактивных решеток записывающими пучками равной интенсивности с длиной волны $\lambda_w = 532 \text{ нм}$.

Численное моделирование временной эволюции амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля в образцах с объемным

легированием проводилось по формуле (4.2), с использованием соотношений (4.1) и (4.3), приведенных выше значений параметров исследуемых образцов и известных литературных данных по материальным характеристикам ниобата лития [25, 28]. Результаты моделирования для образцов № 8 и № 9 при суммарной входной интенсивности записывающих пучков $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$ представлены на рисунках 4.4 и 4.5, соответственно.

Таблица 4.2 – Параметры образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с объемным легированием

Номер и толщина образца, подложка	α_w , см^{-1}	$C_{\text{Cu}^{2+}}$, М^{-3}	E_{phv} , В/м	d_{eff}^{in} , мм	Константа Гласса, (G_o) м/В
8 5 мм LiNbO_3	8,3	$5,04 \cdot 10^{24}$	$0,21 \cdot 10^6$	1,18	$2,5 \cdot 10^{-12}$
9 2 мм LiNbO_3	46	$7,88 \cdot 10^{25}$	$9,6 \cdot 10^6$	0,217	$7,4 \cdot 10^{-12}$

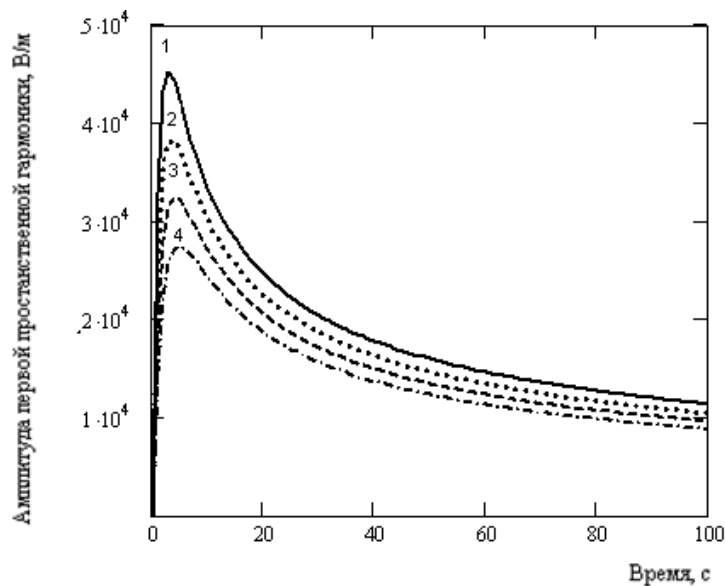


Рисунок 4.4 – Временная зависимость амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной решетки в пластине № 8 $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с объемным легированием на глубинах $x = 0$ (1), 200 (2), 400 (3) и 600 мкм (4), рассчитанная для суммарной входной интенсивности записывающих пучков $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$

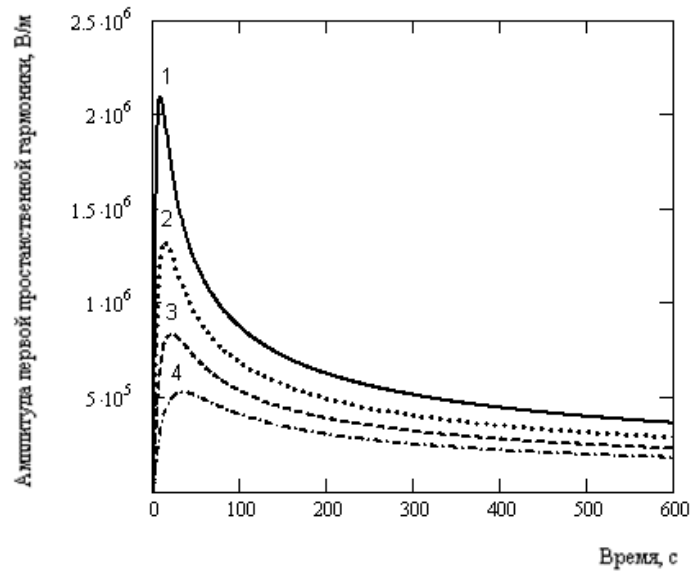


Рисунок 4. 5 – Временная зависимость амплитуды первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной решетки в пластине № 9 $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с объемным легированием на глубинах $x = 0$ (1), 100 (2), 200 (3) и 300 мкм (4), рассчитанная для суммарной входной интенсивности записывающих пучков $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$

Как следует из рисунков 4.4 и 4.5, динамика поля пространственного заряда в образцах с объемным легированием ионами меди качественно имеет такой же характер, как и для записи фоторефрактивных решеток в диффузионно-легированных пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ (ср. с рисунками 4.1–4.3). Максимум амплитуды первой пространственной гармоники, достигающийся в момент времени t_m , также имеет место при $x = 0$, и для рассматриваемого контраста интерференционной картины $m = 1$ его величина составляет $0,219E_{phv}$. Для образцов № 8 и № 9 максимальные достигаемые значения напряженности электрического поля можно оценить, как $E_1^{max}(0, t_m) \approx 4,5 \cdot 10^4$ и $2,1 \cdot 10^6$ В/м.

Таким образом, моделирование динамики поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки при её записи световыми пучками с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм, формирующими интерференционную картину с контрастом $m = 1$ в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза № 8 и № 9 с объемным легированием ионами меди показало, что качественно его временная эволюция имеет такой же характер, как

и в диффузионно-легированных пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 4, № 5 и № 6. Поскольку при реализации фотовольтаических пинцетов важную роль должна играть достигаемая на поверхности образцов амплитуда поля пространственного заряда, наиболее перспективным для этой цели является использование микроструктурированных пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза № 4 и № 5 с диффузионным легированием и объемно-легированного образца № 9, оценка полей в которых дает максимальные значения $E_1^{max}(0, t_m) \approx 4,2 \cdot 10^6$, $2,2 \cdot 10^6$ и $2,1 \cdot 10^6$ В/м, соответственно.

4.2 Методика эксперимента по агрегированию микро- и наночастиц на поверхности пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза

В экспериментальных исследованиях по фотовольтаическому агрегированию использовался композиционный порошок на основе оксида алюминия и оксида церия, с составом $90\% \text{Al}_2\text{O}_3 + 10\% \text{CeO}_2$, состоящий из наночастиц сферической формы, имеющих диаметр от 40 до 80 нм, а также абразивные порошки синтетического алмаза АСМ с диаметром 0,5 мкм и карбида титана TiC с диаметром частиц от 4 до 8 мкм, предназначенные для шлифовки и полировки деталей, в том числе и оптических. Принято считать, что в оптических пинцетах фотовольтаического типа управление частицами из диэлектрического материала реализуется за счет сил диэлектрофоретического типа [52–56]. Диэлектрофоретические силы, действующие в электрическом поле на частицы сферической формы из материала с изотропными диэлектрическими свойствами с радиусом $r \ll \lambda$, определяются поляризуемостью α , зависящей от r и значений статической относительной диэлектрической проницаемости этих частиц ϵ_p и окружающей среды ϵ_m [117]:

$$\alpha = 4\pi r^3 \epsilon_m \frac{\epsilon_p - \epsilon_m}{\epsilon_p + 2\epsilon_m} . \quad (4.4)$$

Монокристаллы CeO_2 , имеющие кубическую симметрию, характеризуются относительной диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_p = 20$ и плотностью $\rho_0 = 7,65 \text{ г/см}^3$ [124, 125]. Для монокристаллической модификации оксида алюминия $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (сапфир) с тригональной симметрией, $\rho_0 = 3,98 \text{ г/см}^3$, а значения относительной диэлектрической проницаемости для компонент электрических полей, параллельных оптической оси, $\varepsilon_3 = 8,6$, и перпендикулярных к ней, $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 10,55$ [126, 127], несколько различаются.

Кристаллы алмаза имеют кубическую симметрию, они характеризуются относительной статической диэлектрической проницаемостью $\varepsilon = 5,7$ и плотностью $\rho_0 = 3,515 \text{ г/см}^3$ [127]. Порошки кристаллического карбида титана TiC , также имеющего кубическую симметрию, обладают металлической проводимостью с удельным сопротивлением $\rho = 2 \text{ мкОм}\cdot\text{м}$ при их пироэлектрическом синтезе, обеспечивающем состав со стехиометрией $\text{TiC}_{0,92}$ [128], и плотностью $\rho_0 = 4,930 \text{ г/см}^3$ [129].

Для экспериментального изучения особенностей фотовольтаического захвата наночастиц в пространственно-неоднородном электрическом поле, создаваемом фоторефрактивной решеткой на поверхности $x = 0$ пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, использовались микроструктурированные образцы № 4, № 5 и № 6, сформированные диффузионным легированием по методике, результаты практической реализации которой представлены в главе 2, а также объемно-легированные образцы № 8 и № 9. Основные параметры этих образцов, результаты исследования формирования фоторефрактивных решеток в которых представлены в главе 3, а данные по численному моделированию временной эволюции амплитуды первой пространственной гармоники поля пространственного заряда на поверхности $x = 0$ – в подразделе 4.1 данной главы, приведены в таблицах 2.1, 3.1, 4.1 и 4.2.

Перед каждым экспериментом по осаждению и фотовольтаическому захвату наночастиц исследуемый образец подвергался отжигу при температуре $\sim 150^\circ\text{C}$ для стирания записанных в нём ранее фоторефрактивных решеток. Методика

эксперимента отличалась от описанной выше в подразд. 3.1 тем, что пропускающие фоторефрактивные решетки формировались только обыкновенными записывающими световыми пучками в течение фиксированных промежутков времени t_r , составлявших от 5 секунд до 1800 с. Далее пластина $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с записанной фоторефрактивной решеткой размещалась горизонтально на подложке, позволявшей после нанесения композиционного нанопорошка устанавливать её на предметном столике микроскопа. Частицы осаждались на пластину сверху в вертикальном направлении на воздухе с расстояния около 20 см с помощью медицинской спринцовки. Как правило, они неравномерно распределялись по всему образцу, а в месте записи решетки невооруженным глазом наблюдалось скопление частиц, распределенных преимущественно в пределах пятна круглой формы с диаметром ~ 2 мм.

Наблюдение агрегированных частиц на исследованных образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ проводилось при освещении их люминесцентной лампой в отраженном свете, с использованием микроскопа МБС-10 и совмещенной с ним цифровой фотокамеры. Общее увеличение микроскопа составляло от 4.8 до 100 крат при использовании окуляров 8^\times и 14^\times . Проведенные эксперименты показали, что для наблюдения агрегирования частиц по всему полю освещаемого записывающими пучками пятна и реализации удовлетворительного разрешения на пространственном периоде фоторефрактивной решетки, оптимальным является использование его максимального значения $\Lambda = 45$ мкм, обеспечиваемого описанной в подразд. 3.1 установкой.

После проведения эксперимента наночастицы удалялись с поверхности образцов этиловым спиртом.

4.3 Агрегирование микро- и наночастиц на поверхности пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза

4.3.1 Экспериментальное исследование агрегирования микро- и наночастиц фоторефрактивной решеткой на поверхности образца № 5

Типичные картины распределения частиц композиционного нанопорошка ($90\% \text{Al}_2\text{O}_3 + 10\% \text{CeO}_2$) по поверхности микроструктурированной пластины $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5, описанные автором в [119, 120, 123] и зарегистрированные для суммарной входной интенсивности записывающих пучков $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$ по методике, рассмотренной выше в подразд. 4.2, представлены на рисунке 4.6.

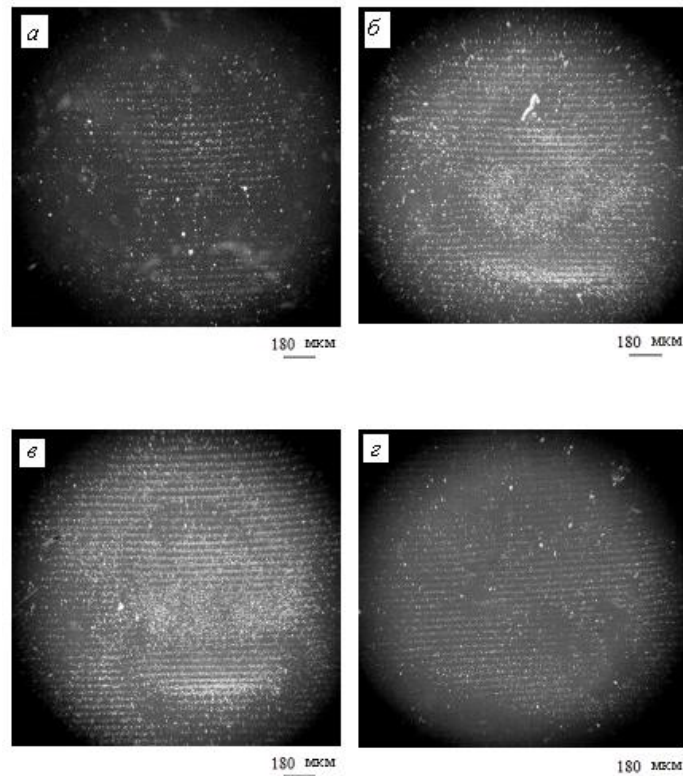


Рисунок 4.6 – Микрофотографии распределений наночастиц порошка с композицией $90\% \text{Al}_2\text{O}_3 + 10\% \text{CeO}_2$ и диаметром 40–80 нм по поверхности X-среза микроструктурированного образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5, подвергнутого предварительной засветке интерференционной картиной с пространственным периодом $\Lambda = 45 \text{ мкм}$, контрастом $m \approx 1$ и суммарной входной интенсивностью записывающих пучков $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$, с продолжительностью = 30 (а), 120 (б), 300 (в) и 1800 с (г). Полярная ось С кристалла расположена вертикально

Как видно из рисунка 4.6,а, агрегация наночастиц композиционного порошка периодическим распределением электрического поля фоторефрактивной решетки начинает проявляться уже при времени записи $t_r = 30$ с. С увеличением t_r степень агрегации частиц увеличивается (см. рисунок 4.6,б для $t_r = 120$ с), достигая максимума при $t_r = 300$ с (рисунок 4.6,в). Однако дальнейшее увеличение времени записи приводит к размытию в наблюдаемых распределениях наночастиц по поверхности образца, уменьшению общего числа захватываемых частиц, и даже к отсутствию агрегации на её отдельных участках (рисунок 4.6,г). Это может быть связано с рассмотренным выше в подразд. 4.1 немонотонным характером формирования поля пространственного заряда фоторефрактивной голограммы при контрасте $m \approx 1$, различающимся также по временным характеристикам для поверхностного слоя с $x \approx 0$ и для глубинных областей, с меньшим уровнем легирования ионами Cu. В кристалле с однородными фотовольтаическими и фотопроводящими свойствами и слабым оптическим поглощением немонотонность временной зависимости амплитуды первой пространственной гармоники поля пространственного заряда для такой голограммы определяется произведением $I_1(mt/\tau)\exp(-t/\tau)$, в которое входит модифицированная функция Бесселя первого порядка, а время релаксации τ , обратно пропорциональное суммарной интенсивности записывающих световых пучков J_0 , имеет фиксированное значение [61]. В пределах слоя с диффузионным легированием J_0 изменяется с глубиной x вследствие сильного оптического поглощения и его изменений (см. рисунок 2.8), вызывая вариации $\tau(x)$, как следует из формулы (3.16). Оценки показывают, что в исследуемом образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ эти изменения не превосходят 20 %, и не должны приводить к значительному временному сдвигу максимума зависимости амплитуды $E_I(t)$ на границе $x = 0$ относительно таковой для дифракционной эффективности $\eta(t)$, представленной для данного образца № 5 зависимостью 5 на рисунке 3.5. Однако нормальная и тангенциальная компоненты диэлектрофоретической силы, предположительно приводящей к агрегированию диэлектрических частиц в

неоднородном электрическом поле фоторефрактивной голограммы на поверхности кристаллов ниобата лития X- и Y-срезов [53, 55], определяются не только первой, но и другими пространственными гармониками. Динамика амплитуд этих гармоник $E_n(t)$ ($n = 0, 1, 2, \dots$) при $m \approx 1$ имеет сложный характер [61] и для образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с диффузионным легированием будет рассмотрена ниже в подразд. 4.4.

Для анализа влияния средней интенсивности записывающих световых пучков J_0 на скорость и характер агрегирования наночастиц порошка с композицией $90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$ фоторефрактивной решеткой на поверхности $x = 0$ микроструктурированного образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5, были проведены эксперименты для $J_0 = 64 \text{ мВт/см}^2$, результаты которых в виде микрофотографий представлены на рисунке 4.7 для времен экспозиции $t_r = 30$ (а), 120 (б), 300 (в) и 1800 с (г). Как следует из сравнения картин агрегирования наночастиц на рисунках 4.6 и 4.7, при низкой интенсивности записывающих пучков более отчетливо проявляются неоднородности сил (предположительно диэлектрофоретических), действующих на наночастицы. Возможно, это обусловлено тем, что в центре области, освещаемой записывающими пучками с гауссовым распределением интенсивности, формирующееся за счет фотофольтаического эффекта электрическое поле генерирует отталкивающие наночастицы диэлектрофоретические силы, в то время как в периферических областях, разнесенных по координате z (вдоль полярной оси С), наночастицы притягиваются к поверхности образца $x = 0$.

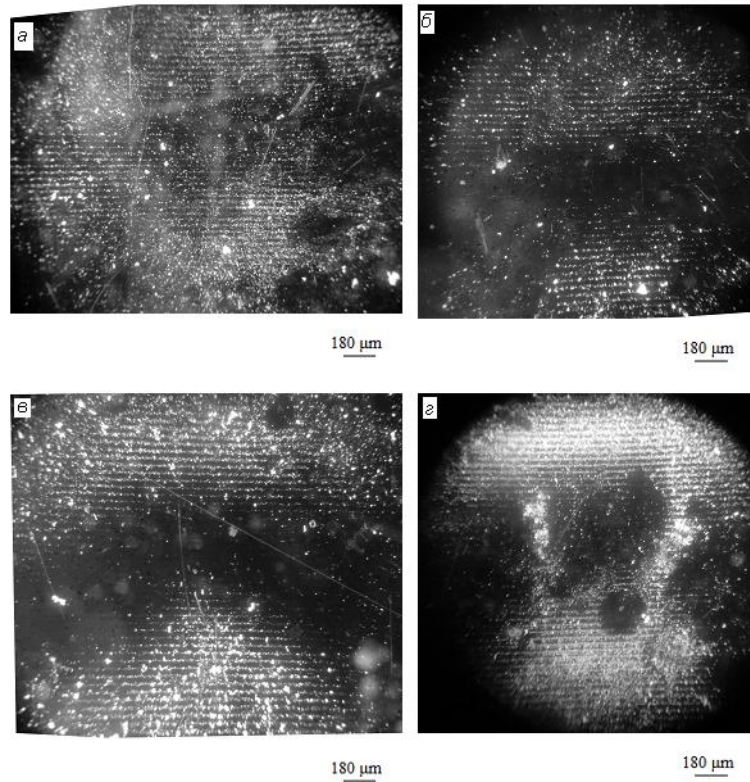


Рисунок 4.7 – Микрофотографии распределений наночастиц порошка с композицией $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ и диаметром 40–80 нм по поверхности X-среза микроструктурированного образца $LiNbO_3:Cu$ № 5, подвергнутого предварительной засветке интерференционной картиной с пространственным периодом $\Lambda = 45$ мкм, контрастом $m \approx 1$ и суммарной входной интенсивностью записывающих пучков $J_0 = 64$ мВт/см², с продолжительностью = 30 (а), 120 (б), 300 (в) и 1800 с (г).

Полярная ось С кристалла расположена вертикально

Другой характерной особенностью использованного композиционного диэлектрического порошка является слипание наночастиц, особенно заметное при его нанесении на поверхность образца в большом количестве (см. микрофотографии на рисунке 4.7, в и г).

Исследование фотовольтаического агрегирования электрическим полем фоторефрактивной решетки с пространственным периодом 45 мкм проводилось и для другого диэлектрического порошка, состоящего из микрочастиц синтетического алмаза размером 0,5 мкм. На рисунке 4.8 представлены микрофотографии распределений частиц синтетического алмаза АСМ с

диаметром 0,5 мкм при суммарной входной интенсивности записывающих пучков $J_0 = 64 \text{ мВт/см}^2$, с продолжительностью = 30 (а), 120 (б), 300 (в) и 1800 с (г).

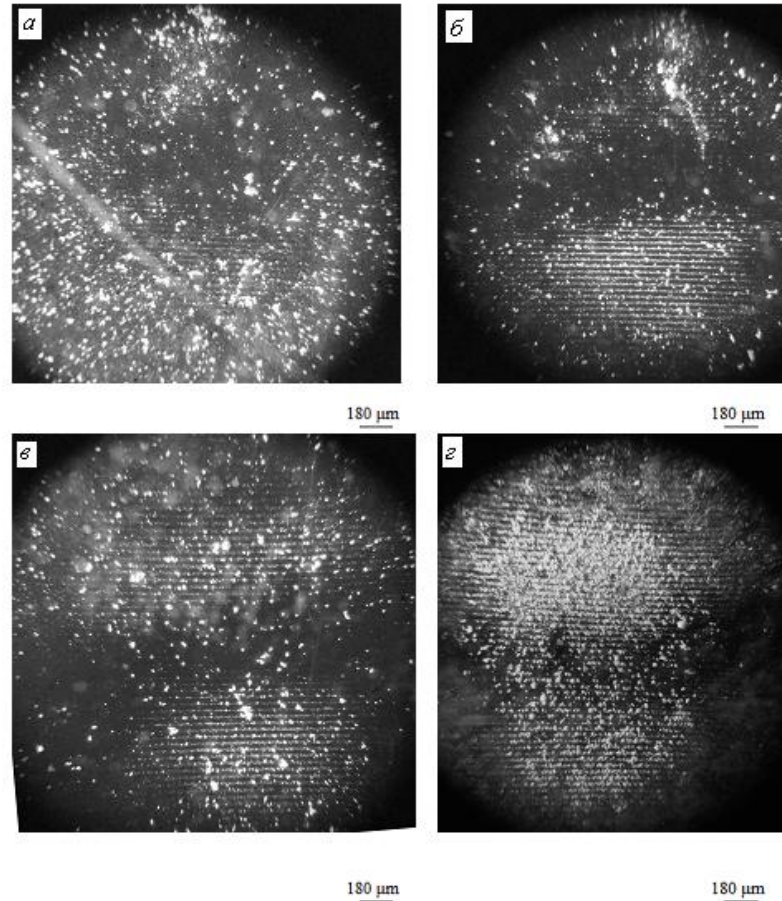


Рисунок 4.8 – Микрофотографии распределений частиц порошка синтетического алмаза АСМ с диаметром 0,5 мкм по поверхности X-среза микроструктурированного образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5, подвергнутого предварительной засветке интерференционной картиной с пространственным периодом $\Lambda = 45 \text{ мкм}$, контрастом $m \approx 1$ и суммарной входной интенсивностью записывающих пучков $J_0 = 64 \text{ мВт/см}^2$, с продолжительностью = 30 (а), 120 (б), 300 (в) и 1800 с (г).
Полярная ось С кристалла расположена вертикально

Сравнение полученных распределений микрочастиц алмаза, представленных на рисунке 4.8, с картинами агрегации наночастиц композитного порошка $90\% \text{Al}_2\text{O}_3 + 10\% \text{CeO}_2$ при той же средней интенсивности записывающих пучков $J_0 = 64 \text{ мВт/см}^2$, иллюстрируемых рисунком 4.7, показывает их качественное

соответствие. Здесь также наблюдается увеличение степени агрегации со временем t_r (см. рисунок 4.8,б для $t_r = 120$ с и рисунок 4.8,в для $t_r = 300$), а при $t_r = 1800$ с проявляется характерное слипание микрочастиц (рисунок 4.8,г), которое не устраняется при воздействии на поверхность пластины $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ потоком воздуха из чистой медицинской спринцовки.

Для изучения особенностей фотовольтаического агрегирования электрическим полем фоторефрактивной решетки с пространственным периодом 45 мкм частиц с металлической проводимостью использовался абразивный порошок карбида титана TiC , состоящий, по данным микроскопического анализа, из микрочастиц с размерами от 4 до 8 мкм. На рисунке 4.9 представлены микрофотографии распределений микрочастиц данного порошка TiC по поверхности микроструктурированного образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5, после формирования в нем фоторефрактивной решетки записывающими пучками с суммарной входной интенсивностью $J_0 = 64$ мВт/см², в течение промежутков времени с продолжительностью $t_r = 30$ (а), 120 (б), 300 (в) и 1800 с (г).

Как видно из рисунка 4.9, агрегация микрочастиц TiC с металлическим типом проводимости при суммарной интенсивности $J_0 = 64$ мВт/см² начинает проявляться при времени записи $t_r = 120$ с, а её степень с ростом t_r увеличивается (см. рисунок 4.9,в и г, для $t_r = 300$ и 1800 с). Характерно, что увеличение времени записи до $t_r = 1800$ с (см. рисунок 4.9,г) приводит к значительному уменьшению слипания микрочастиц в периферических областях, разнесенных по координате z , где наблюдается максимальная степень их агрегации. Однако заметное количество слипшихся микрочастиц присутствует в центральной части освещенной области. Следует также отметить здесь меньшие различия в степени агрегации, в сравнении с распределениями наночастиц $90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$ и микрочастиц синтетического алмаза при данной интенсивности записывающих пучков, представленных на рисунках 4.7 и 4.8, соответственно.

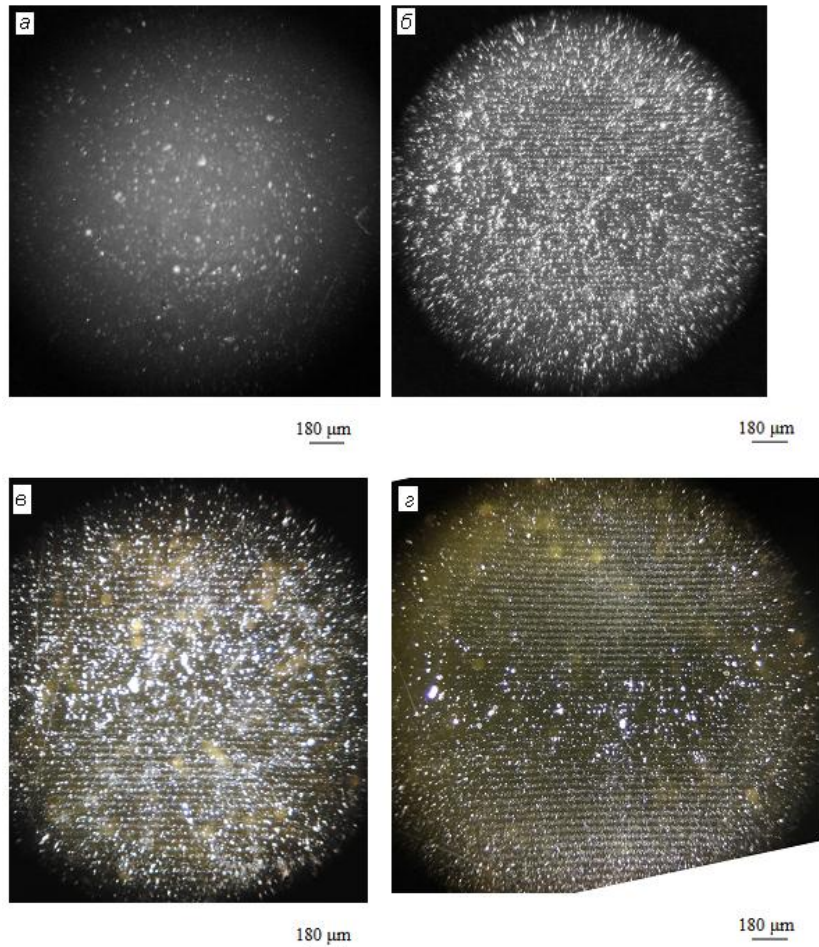


Рисунок 4.9 – Микрофотографии распределений частиц карбида титана TiC с диаметром 4–8 мкм по поверхности X -среза микроструктурированного образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5, подвергнутого предварительной засветке интерференционной картиной с пространственным периодом $\Lambda = 45$ мкм, контрастом $m \approx 1$ и суммарной входной интенсивностью записывающих пучков $J_0 = 64$ мВт/см², с продолжительностью = 30 (а), 120 (б), 300 (в) и 1800 с (з).

Полярная ось C кристалла расположена вертикально

Таким образом, проведенные эксперименты показали, что с использованием фоторефрактивных голограмм с пространственным периодом $\Lambda = 45$ мкм, сформированных записывающими световыми пучками с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм в диффузионно-легированной медью пластине X -среза конгруэнтного ниобата лития (микроструктурированный образец № 5, характеристики которого приведены в таблицах 3.2 и 4.1), возможна реализация

управляемого световым излучением структурирования ансамблей из микро- и наночастиц, как имеющих диэлектрические свойства, так и обладающих металлическим типом проводимости. Захват и агрегирование диэлектрических наночастиц композиционного порошка $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ с диаметром 40–80 нм наблюдается уже при времени записи 30 с как при суммарной интенсивности $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$, так и для $J_0 = 64 \text{ мВт/см}^2$. При интенсивности $J_0 = 64 \text{ мВт/см}^2$, для такого же времени записи, степень агрегирования диэлектрических микрочастиц синтетического алмаза с диаметром 0,5 мкм является сравнительно низкой (см. рисунок 4.8,*a*), а для карбида титана с диаметром 4–8 нм агрегация практически отсутствует (см. рисунок 4.9,*a*).

Обнаружено, что при низкой суммарной интенсивности J_0 записывающих пучков, составлявшей 64 мВт/см^2 , более отчетливо проявляются неоднородности сил, действующих на частицы (предположительно диэлектрофоретических), чем при интенсивности $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$. Наблюдаемое на рисунках 4.7, рисунке 4.8,*b,г* и *д*, рисунке 4.9,*b,г* и *д* уменьшение степени агрегации частиц в центре освещаемой области с гауссовым распределением интенсивности можно связать с наличием в её пределах отталкивающих частицы сил, связанных с нулевой пространственной гармоникой формирующегося за счет фотовольтаического эффекта электрического поля фоторефрактивной решетки. В тоже время, в периферических областях, разнесенных по координате z (вдоль полярной оси S), поле нулевой пространственной гармоники, при гауссовом распределении интенсивности для каждого из записывающих пучков, создает силы, притягивающие частицы к поверхности образца $x = 0$.

Для проверки высказанного выше предположения о связи неоднородности в распределении сил (предположительно диэлектрофоретических) с соответствующей зависимостью от координаты z поля нулевой пространственной гармоники фоторефрактивной решетки, в п. 4.3.2 представлены результаты экспериментального исследования агрегирования микро- и наночастиц на поверхности рассматриваемого микроструктурированного образца № 5 при его

засветке единственным записывающим гауссовым пучком с $\lambda_w = 532$ нм. Следует отметить, что подобные эксперименты с единственным гауссовым пучком, воздействующим на частицы при освещении кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ в направлении, ортогональном к полярной оси C , описаны в работах [52, 54–56].

4.3.2 Экспериментальное исследование агрегирования микро- и наночастиц электрическим полем, создаваемым на поверхности образца № 5 при его засветке гауссовым пучком с радиальной симметрией

В экспериментах по исследованию распределения микро- и наночастиц, наблюдаемого после освещения единственным гауссовым лазерным пучком, имеющим радиально-симметричное распределение интенсивности, проведенных на установке, описанной в подразд. 3.1, по методике, изложенной в подразд. 4.2, было использовано излучение с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм и средней интенсивностью $J_1 = 32$ мВт/см².

На рисунке 4.10 представлены микрофотографии распределений частиц порошков $90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$ (*a*), синтетического алмаза (*b*) и карбида титана TiC с параметрами, описанными выше в подразд. 4.2, при такой засветке диффузионно-легированного образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X -среза № 5 в течение 600 с.

Как видно из рисунка 4.10, так же, как и на микрофотографиях, представленных на рисунке 4.7, рисунке 4.8,*в,г* и *д*, рисунке 4.9,*в,г* и *д*, в центре освещаемой области наблюдается минимальная плотность агрегируемых частиц исследуемых порошков.

Таким образом, наблюдаемое в микроструктурированном образце X -среза $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 с диффузионным легированием уменьшение степени агрегации наночастиц фоторефрактивными решетками, в области максимума в распределении интенсивности записывающих световых пучков (см. рисунки 4.6–4.9), связаны с неоднородным знакопеременным распределением сил (предположительно диэлектрофоретических), создаваемых вдоль полярной оси C

на поверхности $x = 0$ электрическим полем нулевой пространственной гармоники $E_0(x, z, t)$ таких решеток.

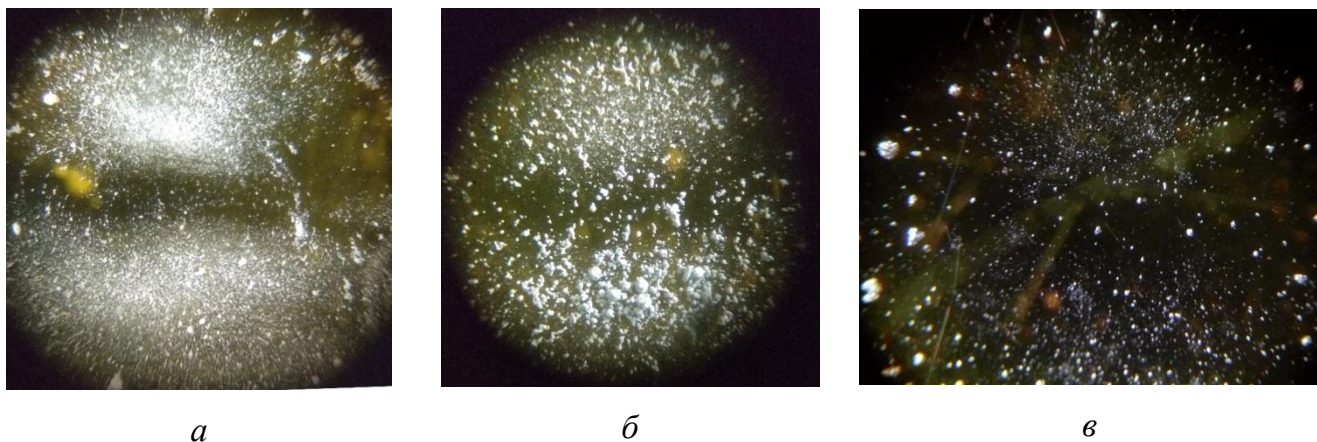


Рисунок 4.10 – Микрофотографии распределений частиц порошков $90\% \text{Al}_2\text{O}_3 + 10\% \text{CeO}_2$ (а), синтетического алмаза (б) и карбида титана TiC по поверхности X-среза микроструктурированного образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 при его засветке в течение 600 с единственным гауссовым пучком со средней интенсивностью $J_1 = 32 \text{ мВт/см}^2$.

Полярная ось С кристалла расположена вертикально

4.3.3 Экспериментальное исследование агрегирования наночастиц фоторефрактивными решетками на поверхности образцов № 8 и № 9

Как отмечалось выше в п. 1.2.3, структурирование ансамблей микро- и наночастиц фоторефрактивными решетками с фотовольтаическим механизмом их формирования подробно исследовано и описано в литературных источниках только для объемно-легированных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ [20–23, 52–56]. Проведенное изучение динамики формирования фоторефрактивных решеток в кристаллах X-среза $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 8 и № 9 с объемным легированием, результаты которого представлены в подразд. 3.2 и 3.3 диссертации, показало, что качественно его временная эволюция имеет такой же характер, как и в диффузионно-легированных образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$. В п. 4.3.3 представлены

некоторые результаты, полученные автором при подробном исследовании агрегации наночастиц фоторефрактивными решетками, записываемыми в кристаллах X-среза $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 8 и № 9, с использованием такой же методики, как и для диффузионно-легированного образца № 5 (см. подразд. 4.2).

Типичные картины распределения частиц композиционного нанопорошка ($90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$) по поверхности пластин X-среза $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 8 и № 9 представлены на рисунке 4.11 для времени записи фоторефрактивной решетки $t_r = 120$ с.

Как видно из рисунка 4.11, для образца № 8 с концентрацией ионов меди в зарядовом состоянии Cu^{2+} , $C_{\text{Cu}^{2+}} = 5.04 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$ (см. таблицы 3.1 и 4.2), и со сравнительно небольшим значением фотовольтаического поля $E_{phv} = 0,21 \cdot 10^6 \text{ В/м}$ (см. подразд. 4.1 и таблицу 4.2) агрегация частиц $90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$ наблюдается на периферических участках засвечиваемой области, как при $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$ (рисунок 4.11,а), так и для более низкой средней интенсивности, $J_0 = 64 \text{ мВт/см}^2$ (рисунок 4.11,б).

Однако для образца № 9 с концентрацией ионов меди в зарядовом состоянии Cu^{2+} , $C_{\text{Cu}^{2+}} = 7,88 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-3}$ (см. таблицы 3.1 и 4.2), и значением фотовольтаического поля $E_{phv} = 9.6 \cdot 10^6 \text{ В/м}$ (см. подразд. 4.1 и таблицу 4.2) агрегация частиц $90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$ при средней интенсивности $J_0 = 64 \text{ мВт/см}^2$ на подобных же периферических участках (рисунок 4.11,в) наблюдается только в виде скоплений частиц порошка, при отсутствии их выстраивания вдоль штрихов фоторефрактивной решетки по всей засвечиваемой области. Увеличение средней интенсивности до значения $J_0 = 636 \text{ мВт/см}^2$, при том же времени записи решетки, $t_r = 120$ с (рисунок 4.11,г), приводит к заметной агрегации частиц её штрихами практически для всей области засветки. Такое поведение свидетельствует о различии во временной эволюции сил (предположительно диэлектрфоретических), соответствующих первой и нулевой пространственной

гармоникам фоторефрактивной решетки, при различных значениях средней интенсивности записывающих её световых пучков.

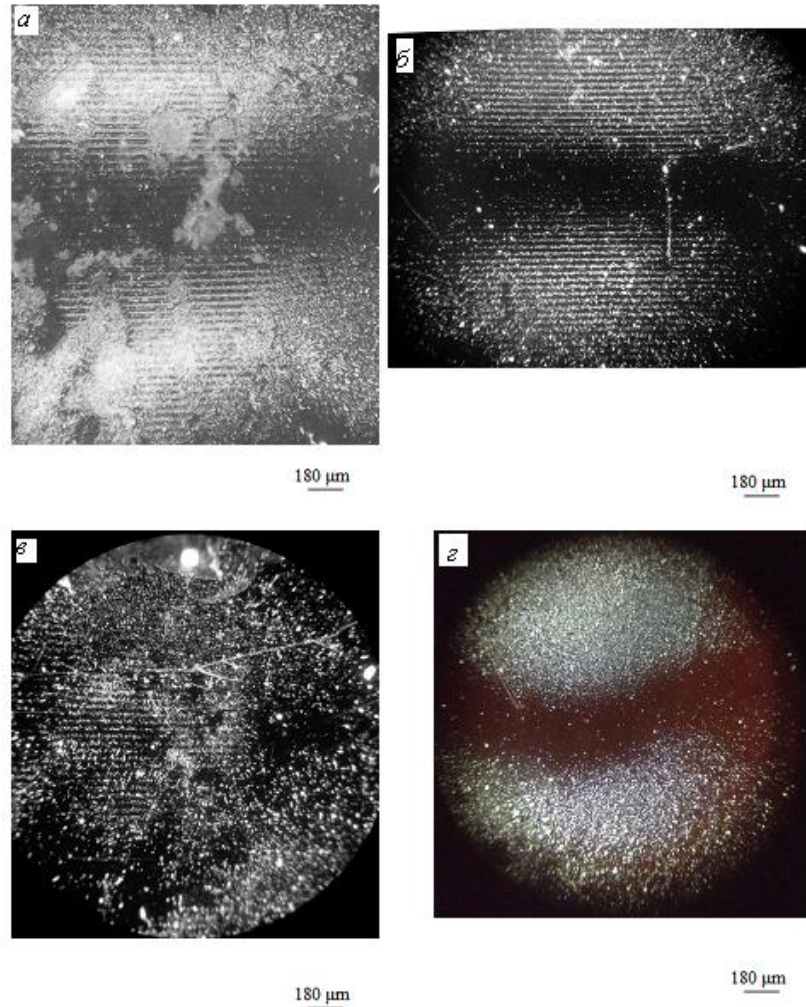


Рисунок 4.11 – Микрофотографии распределений наночастиц порошка с композицией $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ и диаметром 40-80 нм по поверхности X-среза образцов $LiNbO_3:Cu$ № 8 (а, б) и № 9 (в, г), подвергнутых предварительной засветке интерференционной картиной с пространственным периодом $\Lambda = 45$ мкм, контрастом $m \approx 1$ и суммарной входной интенсивностью записывающих пучков $J_0 = 636$ мВт/см² (а, в) и $J_0 = 64$ мВт/см² (б, г) с продолжительностью 120 с.

Полярная ось С кристалла расположена вертикально

Таким образом, получено, что структурирование ансамблей наночастиц полем пространственного заряда фоторефрактивной решетки реализуется и на

поверхности кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с объемным легированием. Качественно его особенности, описанные в настоящем п. 4.3.3, соответствуют более подробно рассмотренному в п. 4.3.1 поведению микро- и наночастиц при их фотовольтаическом агрегировании на поверхности микроструктурированной пластины $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза № 5, полученной диффузионным легированием по методике, результаты практической реализации которой изложены в главе 2.

Полученные в п. 4.3.1 – 4.3.3 экспериментальные результаты свидетельствуют о возможности использования кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с диффузионным и объемным легированием для реализации на их основе фотовольтаических пинцетов.

4.4 Моделирование распределений диэлектростатических сил, создаваемых полем пространственного заряда фоторефрактивной решетки над поверхностью пластины $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза

Представленные выше в подразд. 4.3 результаты экспериментов по агрегированию микро- и наночастиц фотовольтаическими полями, формирующимися при освещении пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза картиной интерференции пучков или единственным лазерным гауссовым пучком с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм, демонстрируют неоднородный характер сил (предположительно диэлектростатических), действующих на частицы порошков, зависящий от времени светового воздействия. В настоящем подразд. 4.4 рассмотрена связь диэлектростатических сил с электрическими полями пространственного заряда фоторефрактивной решетки, анализ которых для преобладающей, тангенциальной к границе кристалла $x = 0$ компоненты $E_z(x, z) = E(x, z)$, был выполнен выше в подразд. 3.4–3.6. Проведено численное моделирование распределений этих сил, создаваемых фоторефрактивной решеткой над поверхностью пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, полученных диффузионным легированием.

4.4.1 Диэлектрофоретические силы, действующие на нейтральные частицы в электрическом поле

Как известно [54, 56, 117], электрическое поле \mathbf{E} индуцирует дипольный момент \mathbf{p} частицы, компоненты которого в случае кристаллической и/или геометрической анизотропии определяются как

$$p_i = \varepsilon_0 \alpha_{ij} E_j, \quad (4.5)$$

где α_{ij} – тензор поляризуемости частицы. Диэлектрофоретическая сила \mathbf{f} , действующая на такую частицу в неоднородном поле \mathbf{E} , связана с ним следующим соотношением [20]:

$$\mathbf{f} = (\mathbf{p} \cdot \nabla) \mathbf{E}, \quad (4.6)$$

включающим векторный дифференциальный оператор ∇ .

Ограничимся далее рассмотрением частиц сферической формы из материала с изотропными диэлектрическими свойствами с радиусом $r \ll \Lambda$, находящихся в электрическом поле с компонентами $E_x^{out}(x, z) = -\partial\varphi(x, z) / \partial x$ и $E_z^{out}(x, z) = -\partial\varphi(x, z) / \partial z$, создаваемыми фоторефрактивной решеткой над поверхностью кристалла (см. рисунки 1.16 из работы [30] в главе 1), при $x \geq 0$. В этом случае поляризуемость частицы является скалярной величиной α , определяемой формулой (4.1), и векторные компоненты действующей на неё диэлектрофоретической силы f_x и f_z , иллюстрируемые рисунком 4.12, с учетом формул (4.5) и (4.6) могут быть представлены в виде соотношений, аналогичных приведенным в работах [20, 23, 52, 54, 56]

$$f_x = \mathbf{x}^0 f_x = \mathbf{x}^0 4\pi r^3 \varepsilon_0 \varepsilon_m \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \left[\frac{\partial\varphi}{\partial x} \frac{\partial^2\varphi}{\partial x^2} + \frac{\partial\varphi}{\partial z} \frac{\partial^2\varphi}{\partial z \partial x} \right] =$$

$$= x^0 2\pi r^3 \varepsilon_0 \varepsilon_m \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \frac{\partial}{\partial x} \left[\left(E_x^{out}(x, z) \right)^2 + \left(E_z^{out}(x, z) \right)^2 \right], \quad (4.7)$$

$$\begin{aligned} f_z = z^0 f_z = z^0 4\pi r^3 \varepsilon_0 \varepsilon_m \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \left[\frac{\partial \varphi}{\partial x} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial z \partial x} + \frac{\partial \varphi}{\partial z} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial z^2} \right] = \\ = z^0 2\pi r^3 \varepsilon_0 \varepsilon_m \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \frac{\partial}{\partial z} \left[\left(E_x^{out}(x, z) \right)^2 + \left(E_z^{out}(x, z) \right)^2 \right]. \end{aligned} \quad (4.8)$$

Особенности поведения частиц, расположенных на поверхности фоторефрактивного кристалла в неоднородном электрическом поле, создаваемом распределением пространственного заряда, формирующимся в нем при лазерной засветке, как в случае единственного пучка, так и двух интерферирующих записывающих пучков, могут быть рассмотрены на примере частиц 1 и 2, показанных на рисунке 4.12.

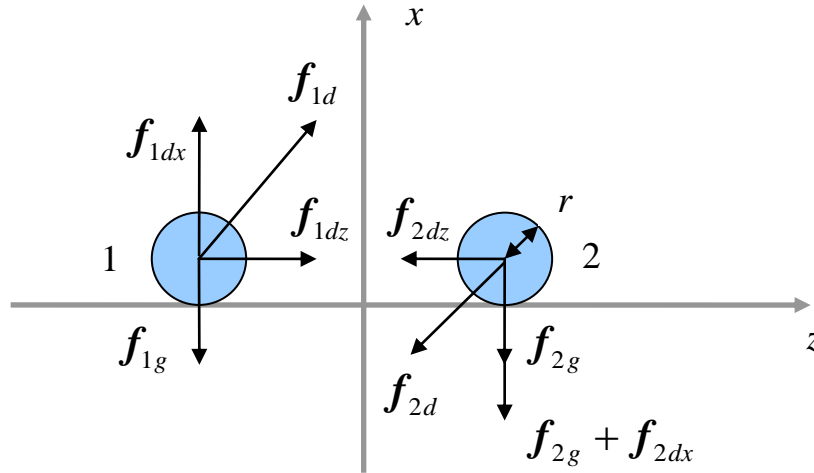


Рисунок 4.12 - Силы, действующие на сферические частицы 1 и 2 с радиусом r на пластине из фоторефрактивного кристалла с распределением электрического поля $E^{out}(x, z)$, создаваемым над ней, при $x \geq 0$, распределением пространственного заряда, формирующимся при $x \leq 0$ в результате неоднородной засветки.

f_{1g} и f_{2g} – силы тяжести и f_{1d} и f_{2d} – диэлектрфоретические силы,

действующие на частицы 1 и 2, соответственно

Будем полагать, что неоднородное электрическое поле, действующее на частицу 1, которое можно определить как $E^{out}(r, z_1)$, приводит к возникновению описываемой формулами (4.7) и (4.8) диэлектрофоретической силы с компонентами $f_{1x}(r, z_1)$ и $f_{1z}(r, z_1)$, имеющих проекции положительного знака на оси x и z . При этом тангенциальная компонента $f_{1z}(r, z_1)$ стремится переместить частицу 1 в направлении начала координат, а нормальная составляющая $f_{1x}(r, z_1)$ отталкивает её от поверхности кристалла $x = 0$. Поскольку отталкивающая сила $f_{1x}(r, z_1)$ для данной частицы предполагается большей по абсолютной величине, чем сила тяжести f_{1g} , то в результате она не должна локализоваться на поверхности кристалла в точке с координатой $z = z_1$. Неоднородное электрическое поле, действующее на частицу 2, которое можно определить как $E^{out}(r, z_2)$, приводит к возникновению диэлектрофоретической силы с компонентами $f_{2x}(r, z_2)$ и $f_{2z}(r, z_2)$. Поскольку сила $f_{2x}(r, z_2)$ для частицы 2 имеет одинаковое направление с силой тяжести f_{2g} , то частица может локализоваться на поверхности кристалла в точке с координатой $z = z_2$.

4.4.2 Распределение электрического поля над поверхностью кристалла, создаваемое исключительно тангенциальной составляющей поля фоторефрактивной решетки, записываемой одномерными гауссовыми пучками

Следует отметить, что для геометрии, представленной на рисунке 4.14, входящие в (4.7), (4.8) квадраты нормальной и тангенциальной компонент электрического поля над кристаллом (при $x \geq 0$) определяются имеющей максимальную величину, в сравнении со слабой нормальной составляющей $E_x(x, z)$, компонентой существующего в кристалле (при $x \leq 0$) поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки $E_z(x, z)$. Для анализа

распределения диэлектрфоретических сил f_x и f_z над поверхностью кристалла $x \geq 0$ можно воспользоваться условием непрерывности тангенциальных составляющих при $x = 0$:

$$E_z^{out}(0, z, t) = E(0, z, t), \quad (4.9)$$

где электрическое поле фоторефрактивной решетки $E(x, z, t)$ для кристаллов с диффузионным легированием фотовольтаической примесью (Cu, Fe и др.) определяется уравнением (3.15). В этом уравнении, если ограничиться приближением одномерных записывающих гауссовых пучков с радиусом перетяжки Δz , необходимо дополнительно учесть зависимость времени релаксации от координаты z и смену направления оси X на противоположное к используемому в подразделе 3.4:

$$\frac{1}{\tau(x, z)} = \frac{e\mu s_w C_{Cu^+}^m}{\varepsilon_3 \gamma C_{Cu^{2+}}^m} J_0 \exp\left(-\frac{2z^2}{\Delta z^2}\right) \exp\left[\frac{\sqrt{\pi}}{2} k_m \Delta x \operatorname{erf}\left(\frac{x}{\Delta x}\right)\right], \quad \text{при } x \leq 0. \quad (4.10)$$

Разложение последнего экспоненциального множителя в (3.15) в ряд по модифицированным функциям Бесселя n -го порядка, $I_n(mt/\tau(x, z))$, позволяет получить динамику эволюции гармоник поля пространственного заряда на поверхности кристалла $E_z^{(n)}(0, z, t)$ в следующем виде:

$$E_z^{(0)}(0, z, t) = -\frac{E_{phv}^m}{2} \left\{ 1 - \exp\left[-\frac{t}{\tau_0(z)}\right] I_0\left(\frac{mt}{\tau_0(z)}\right) \right\}, \quad (4.11)$$

$$E_z^{(n)}(x, t) = -E_{phv}^m I_n\left(\frac{mt}{\tau_0(z)}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_0(z)}\right) \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda} n\right), \quad (4.12)$$

где введено обозначение $\tau_0(z) = \tau(0, z)$. Нетрудно показать, что создаваемое над поверхностью кристалла полем нулевой пространственной гармоники, определяемым формулой (4.11), распределение потенциала $\varphi^{(0)}(x, z)$,

удовлетворяющее уравнению Лапласа и граничному условию (4.9), можно записать в виде следующего интеграла Фурье:

$$\varphi^{(0)}(x, z, t) = \frac{E_{phv}^m}{2\pi} \int_0^{\infty} F(K_0, t) \frac{\exp(-K_0 x)}{K_0} \sin(K_0 z) dK_0, \quad (4.13)$$

с зависящими от времени записи фоторефрактивной решетки коэффициентами разложения:

$$F(K_0, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ 1 - \exp\left[-\frac{t}{\tau_0(z)}\right] I_0\left(\frac{mt}{\tau_0(z)}\right) \right\} \cos(K_0 z) dz. \quad (4.14)$$

Использование (4.13) позволяет выразить компоненты электрического поля, создаваемого нулевой пространственной гармоникой фоторефрактивной решетки над поверхностью кристалла, при $x \geq 0$, как

$$E_x^{out(0)}(x, z, t) = \frac{E_{phv}^m}{2\pi} \int_0^{\infty} F(K_0, t) \exp(-K_0 x) \sin(K_0 z) dK_0, \quad (4.15)$$

$$E_z^{out(0)}(x, z, t) = -\frac{E_{phv}^m}{2\pi} \int_0^{\infty} F(K_0, t) \exp(-K_0 x) \cos(K_0 z) dK_0. \quad (4.16)$$

Электрические поля над поверхностью кристалла, связанные с остальными пространственными гармониками фоторефрактивной решетки, определяемые при $n = 1, 2, 3, \dots$ соотношениями (4.12), строго говоря, не являются периодическими, вследствие зависимости их амплитуд от координаты z (см. формулы (4.12) и (4.10)). Однако вследствие выполнения условия $\Delta z \gg \Lambda$ эта зависимость является слабой, что позволяет для описания распределений электрических полей при $x \geq 0$, удовлетворяющих граничному условию (4.9), воспользоваться следующими приближенными соотношениями:

$$E_x^{out(n)}(x, z, t) = E_{phv}^m I_n\left(\frac{mt}{\tau_0(z)}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_0(z)}\right) \exp\left(-n \frac{2\pi}{\Lambda} x\right) \sin\left(n \frac{2\pi}{\Lambda} z\right), \quad (4.17)$$

$$E_z^{out(n)}(x, z, t) = -E_{phv}^m I_n \left(\frac{mt}{\tau_0(z)} \right) \exp \left(-\frac{t}{\tau_0(z)} \right) \exp \left(-n \frac{2\pi}{\Lambda} x \right) \cos \left(n \frac{2\pi}{\Lambda} z \right). \quad (4.18)$$

Таким образом, динамика формирования электрических полей, создаваемых над поверхностью $x \geq 0$ кристалла ниобата лития с диффузионным легированием фотовольтаически активной примесью (Cu, Fe и др.) фоторефрактивной решеткой, при её записи одномерными гауссовыми световыми пучками с произвольным соотношением интенсивностей, обеспечивающим контраст от $m = 0$ до $m = 1$, может быть описана с помощью полученных выше соотношений (4.15) – (4.18).

4.4.3 Анализ распределения диэлектрофоретических сил, индуцированных засветкой одномерным гауссовым световым пучком над поверхностью пластины X-среза ниобата лития, диффузионно-легированной фотовольтаически активной примесью

При воздействии лазерного пучка, зависимость интенсивности которого от координаты z характеризуется функцией Гаусса с размером перетяжки Δz , совпадающей с границей кристалла $x = 0$, и не зависит от y , распределение поля пространственного заряда над кристаллом определяется соотношениями (4.14) – (4.16) и (4.10). Такое распределение интенсивности может быть получено преобразованием традиционного лазерного пучка с радиальной симметрией, например, с помощью цилиндрических линз. Результаты расчета распределений соответственно тангенциальной и нормальной к границе $x = 0$ компонент поля $E_z^{out(0)}(x, z, t)$ и $E_x^{out(0)}(0, z, t)$ фоторефрактивной решетки на ней, для некоторых значений средней интенсивности J_1 и времени экспозиции, представлены на рисунке 4.13. В расчетах использовались параметры микроструктурированного образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5, приведенные выше в подразд. 4.1.

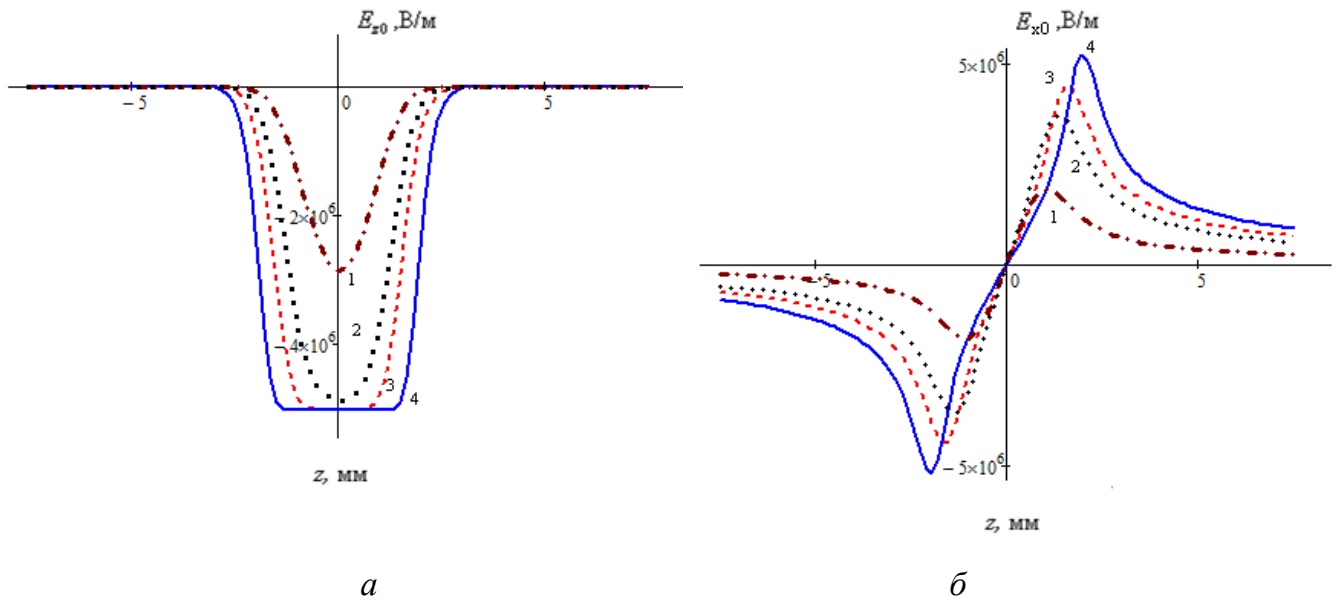


Рисунок 4.13 – Расчетные распределения вдоль оси z тангенциальной (a) и нормальной (b) компонент поля пространственного заряда на расстоянии $r_a = 30$ нм над поверхностью $x = 0$ кристалла с параметрами, соответствующими образцу $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5, наведенные одномерным гауссовым световым пучком с длиной волны $\lambda = 532$ нм и размером перетяжки $\Delta z = 1,4$ мм при значениях интенсивности $J_1 = 32$ мВт/см² (1, 2) и 320 (3, 4) мВт/см² и продолжительности засветки $t = 600$ с (1, 3) и 2500 с (2, 4)

Как следует из рисунка, при значении интенсивности света $J_0 = 32$ мВт/см² и продолжительности засветки 600 с распределение тангенциальной составляющей поля над кристаллом $E_z^{out(0)}(z)$ (кривая 1 на рисунке 4.13,а) близко к функции Гаусса, что характерно для начального (линейного) участка формирования поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки, динамика которого для единственного пучка, воздействующего на кристалл, описывается формулами (4.11) и (4.10) при контрасте $m = 0$. При увеличении продолжительности засветки (кривая 2) и интенсивности света (кривые 3 и 4), проявляется нелинейность процессов перераспределения зарядов по донорным (Cu^+) и ловушечным (Cu^{2+}) центрам, приводящая, в случае кривых 3 и 4, к насыщению в центре пучка, когда напряженность поля достигает значения $E_{phv}^m / 2$ (см. формулу (4.11)).

Характерно, что нормальная составляющая поля над кристаллом $E_x^{out(0)}(z)$, определяемая соотношениями (4.15) и (4.14) при $m = 0$, имеет экстремумы на периферии засвечиваемой области. При этом с увеличением экспозиции, равной произведению интенсивности J_1 на время засветки t_r , увеличиваются по абсолютной величине как значения поля в этих экстремумах, так и их расстояние от центра пучка.

Диэлектрофоретическая сила, действующие на микро- и наночастицы, нанесенные на поверхность кристалла, определяются, как видно из соотношений (4.7) и (4.8), градиентом квадрата модуля поля пространственного заряда

$$W(x, z, t) = \left| \mathbf{E}^{out}(x, z, t) \right|^2 = \left(E_x^{out}(x, z, t) \right)^2 + \left(E_z^{out}(x, z, t) \right)^2. \quad (4.19)$$

Распределения $W(z)$, рассчитанные по соотношениям (4.14)–(4.16) и (4.10) для расстояния от поверхности кристалла x , равного среднему радиусу $r_a = 30$ нм наночастиц порошка $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$, соответствующие тем же условиям засветки образца $LiNbO_3:Cu$ № 5, что и для рисунка 4.13, представлены на рисунке 4.14.

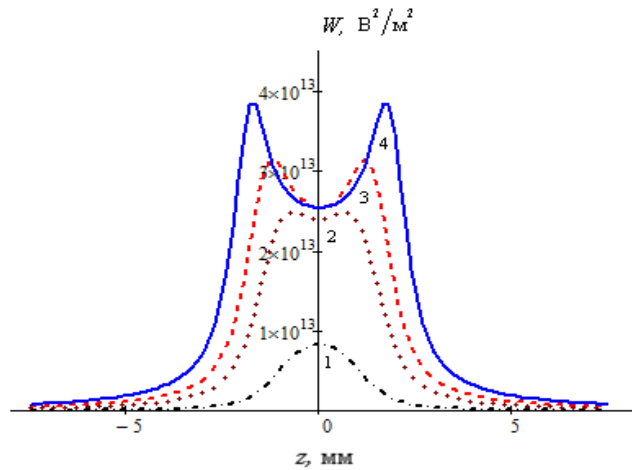


Рисунок 4.14 – Расчетные распределения квадрата модуля поля пространственного заряда на расстоянии $r_a = 30$ нм над поверхностью $x = 0$ кристалла с параметрами, соответствующими микроструктурированному образцу $LiNbO_3:Cu$ № 5, наведенные одномерным гауссовым световым пучком с длиной волны $\lambda = 532$ нм и размером перетяжки $\Delta z = 1,4$ мм при значениях интенсивности $J_0 = 32$ мВт/см² (1, 2) и 320 (3, 4) мВт/см² и продолжительности засветки $t = 600$ с (1, 3) и 2500 с (2, 4)

Пространственная локализация нейтральных частиц над поверхностью кристалла должна наблюдаться в минимумах диэлектрофоретического потенциала [131–134], определяемого как

$$V_{DEF}(x, z, t) = -\varepsilon_0 \alpha W(x, z, t). \quad (4.20)$$

Вдоль нормали к поверхности этот минимум соответствует координате $x = 0$, поскольку в соответствии с соотношениями (4.15) и (4.16) электрическое поле является здесь максимальным. Результаты расчета с использованием соотношений (4.20), (4.4), (4.14) – (4.16) и (4.19) распределений диэлектрофоретического потенциала $V_{DEF}(z)$ для наночастиц CeO_2 с радиусом $r_a = 30$ нм ($\varepsilon_p = 20$, $\rho_0 = 7.65$ г/см³ [124,125], см. подразд. 4.2), создаваемых на расстоянии от поверхности кристалла $x = r_a$ при засветке образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 рассмотренным выше одномерным гауссовым пучком со значениями интенсивности $J_0 = 32$ и 320 мВт/см², представлены на рисунке 4.15,а и 4.15,б, соответственно.

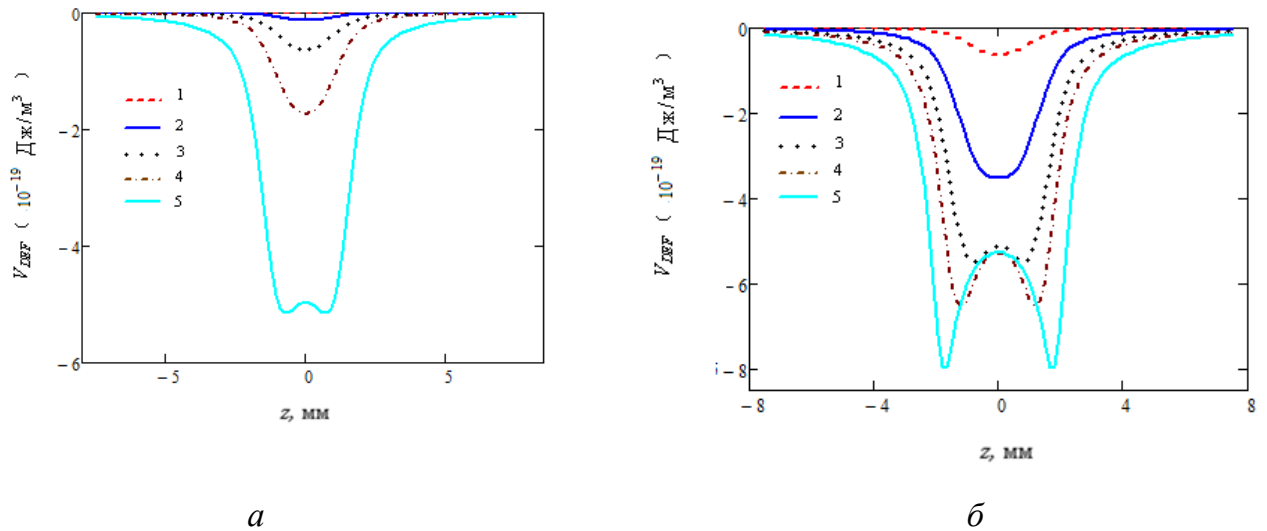


Рисунок 4.15 – Распределение диэлектрофоретического потенциала $V_{DEF}(z)$ для наночастиц CeO_2 с радиусом $r_a = 30$ нм, создаваемых на расстоянии от поверхности кристалла $x = r_a$ при засветке образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 одномерным гауссовым пучком со значениями интенсивности $J_0 = 32$ мВт/см² (а) и 320 мВт/см² (б) при продолжительности засветки $t_r = 30$ с (1), 120 с (2), 300 с (3), 600 с (4), 2500 с (5)

Таким образом, рассмотренная модель действующих на нейтральные частицы диэлектрофоретических сил, принимающая во внимание только преобладающую в кристалле компоненту электрической напряженности поля пространственного заряда $E_z(x, z) = E(x, z)$, наводимую одномерным гауссовым пучком, не описывает экспериментально наблюдаемого распределения частиц порошка $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ (см. рис. 4.10, а) при засветке образца $LiNbO_3:Cu$ № 5 лазерным пучком Гаусса с радиальной симметрией, имеющим интенсивность $J_1 = 32$ мВт/см². Рассчитанное распределение диэлектрофоретического потенциала $V_{DEF}(z)$ описывается в данном случае штрих-пунктирной кривой 4 на рисунке 4.15,а, имеющей единственный минимум в середине гауссова пучка, предполагавшегося одномерным, при $z = 0$. Такое расхождение результатов расчета с экспериментальными данными может быть связано как с принятыми приближениями, так и с неприменимостью рассматриваемой диэлектрофоретической модели захвата частиц для поля пространственного заряда, создающего соответствующие силы над поверхностью неполярного X-среза кристалла за счет фотовольтаического механизма перераспределения заряда.

4.5 Экспериментальное исследование агрегирования наночастиц электрическим полем, создаваемым на поверхности микроструктурированного образца № 5 при его засветке эллиптическими гауссовыми пучками

Анализ распределения электрического поля над поверхностью кристалла проводился в пп. 4.4.2 и 4.4.3 для световых воздействий в виде одномерных гауссовых пучков, в то время как все экспериментальные результаты по агрегированию частиц, описанные выше в пп. 4.3.1, 4.3.2, и 4.3.3, получены для лазерного гауссова пучка с радиальной симметрией. Более соответствующим используемой выше теоретической модели диэлектрофоретических сил f_x и f_z

и потенциала V_{DEF} представляется использования в экспериментах эллиптических гауссовых пучков.

Для экспериментальной реализации агрегирования микро- и наночастиц эллиптическими пучками использовался коллиматор на основе двух цилиндрических линз с фокусными расстояниями $F_1 \approx 140$ мм и $F_2 \approx 280$ мм, расширяющий исходные лазерные пучки (см. подразд. 3.1 и рисунок 3.1) в направлении, ортогональном полярной оси Z . В такой модифицированной схеме в плоскости XZ кристалла угол между записывающими пучками не изменялся, что позволило наблюдать агрегирование наночастиц электрическим полем, создаваемым в образце № 5 как интерференционной картиной с тем же пространственным периодом $\Lambda = 45$ мкм, что и в предыдущих экспериментах, так и единственным эллиптическим гауссовым пучком. По фотографии одного из пучков, представленной на рисунке 4.16, были измерены размеры перетяжки пучка $2\Delta z = 2,9$ мм и $2\Delta y \approx 5,8$ мм по осям z и y , соответственно.

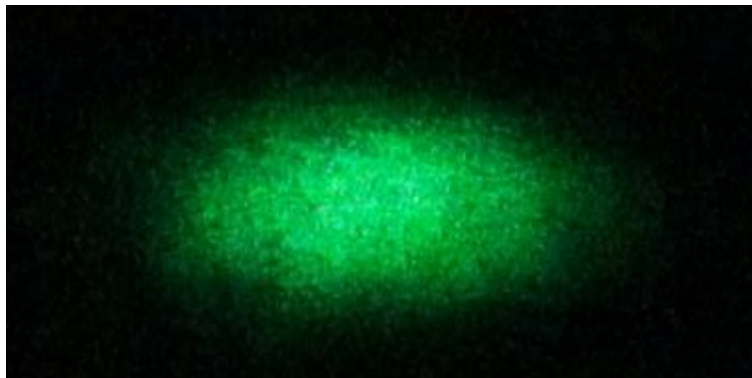


Рисунок 4.16 – Фотография пучка эллиптической формы

В экспериментах по исследованию распределения микро- и наночастиц, наблюдаемого после освещения образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X -среза № 5 единственным эллиптическим гауссовым пучком, было использовано излучение с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм и средней интенсивностью $J_1 = 79,5$ мВт/см². На рисунке 4.17 представлены полученные в результате микрофотографии распределений частиц порошков $90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$ для засветки в течение промежутков времени от 45 до 600 с.

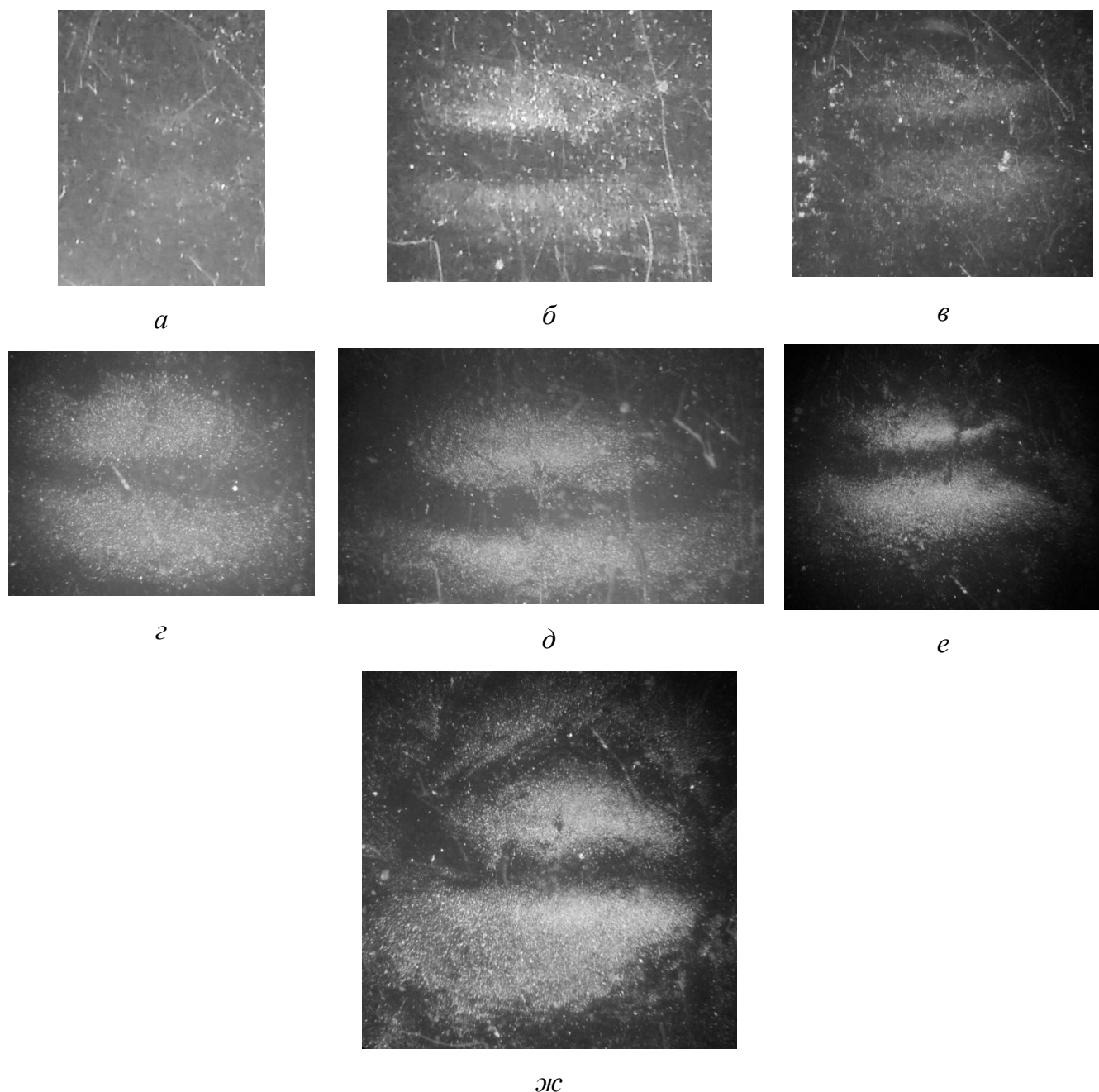


Рисунок 4.17 – Микрофотографии распределений наночастиц порошка с композицией $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ и диаметром 40–80 нм по поверхности X-среза микроструктурированного образца $LiNbO_3:Cu$ № 5 при его засветке в течение 45 с (*a*), 60 с (*б*), 120 с (*в*), 180 с (*г*), 240 с (*д*), 300 с (*е*), 600 с (*ж*) единственным эллиптическим гауссовым пучком.

Полярная ось *C* кристалла расположена вертикально

Как видно из рисунка 4.17, и при использовании эллиптического гауссова пучка, создающего в кристалле вдоль полярной оси *Z* распределение

электрического поля, лучше соответствующее одномерному приближению, чем в случае радиально-симметричного лазерного пучка, в центре освещаемой области наблюдается минимальная плотность агрегируемых частиц.

Агрегирование частиц при засветке образца № 5 картиной интерференции двух эллиптических пучков с такими же значениями пространственного периода $\Lambda = 45$ мкм и контраста $m \approx 1$, как и для исследованного выше в пп. 4.3.1 и 4.3.3 случая лазерных гауссовых пучков с радиальной симметрией, иллюстрируется рисунком 4.18. Здесь представлены микрофотографии распределений наночастиц порошка с композицией $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ и диаметром 40–80 нм по поверхности X-среза кристалла, полученные после засветки интерференционной картиной со средней интенсивностью 159 мВт/см² в течение 30 с (рисунок 4.18,*а*) и 45 с (рисунок 4.18,*б*).

*а**б*

Рисунок 4.18 – Микрофотографии распределений наночастиц порошка с композицией $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ и диаметром 40–80 нм по поверхности X-среза образца $LiNbO_3:Cu$ № 5, подвергнутого предварительной засветке интерференционной картиной с пространственным периодом $\Lambda = 45$ мкм, контрастом $m \approx 1$ и суммарной входной интенсивностью записывающих эллиптических гауссовых пучков

$$J_0 = 159 \text{ мВт/см}^2, \text{ с продолжительностью } = 30 \text{ с (а), } 45 \text{ с (б)}$$

Как следует из сравнения рисунка 4.18 с приведенным выше в п. 4.3.1 рисунком 4.6, картины распределения наночастиц порошка при их агрегации фотовольтаическим полем фоторефрактивных решеток, создаваемых гауссовыми

пучками радиально-симметричной формы и эллиптического вида, качественно близки друг к другу. Наличие меньшей концентрации агрегированных частиц в центре картин распределения на рисунке 4.6,*а* и рисунке 4.18, полученных при минимальных значениях экспозиции, не согласуется с результатами расчетов диэлектрофоретического потенциала, иллюстрируемых рисунком 4.15, поскольку соответствующие малым значениям экспозиции кривые 1–4 на рисунке 4.15, а и зависимости 1–2 (рисунок 4.15,*б*) имеют минимум в центре одномерного гауссова пучка, при $z = 0$.

Таким образом, проведенные экспериментальные исследования агрегирования наночастиц электрическим полем, создаваемым в микроструктурированном образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ № 5 при его засветке эллиптическими гауссовыми пучками показали, что в центральной части освещенной области концентрация агрегируемых наночастиц порошка с композицией $90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$ является минимальной при всех используемых значениях экспозиции, приводящих к его неравномерному осаждению на поверхность кристалла $x = 0$. Из этого следует, что модель действующих на нейтральные частицы диэлектрофоретических сил, принимающая во внимание только преобладающую в кристалле компоненту электрической напряженности поля пространственного заряда $E_z(x, z) = E(x, z)$, наводимую одномерным гауссовым пучком, не описывает экспериментально наблюдаемого распределения частиц порошка $90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$ (см. рисунки 4.10,*а* и 4.17). Такое расхождение результатов расчета с экспериментальными данными может быть связано как с принятыми приближениями, так и с неприменимостью рассматриваемой диэлектрофоретической модели захвата частиц для поля пространственного заряда, создающего соответствующие силы над поверхностью неполярного X -среза кристалла за счет фотовольтаического механизма перераспределения заряда.

4.6 Выводы

В настоящей главе представлены результаты работ автора [119, 120, 123], выполненных совместно с Татьянниковым А.И., Шандаровым С.М. и другими членами научной группы, по моделированию динамики поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки в пластинах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, основанные на результатах главы 3 диссертации, и по исследованию фотовольтаического агрегирования диэлектрических наночастиц на поверхности образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза, как сформированных методом высокотемпературной диффузии из металлических пленок меди, так и изготовленных из объемно-легированных медью кристаллов ниобата лития. Основные результаты состоят в следующем.

1. Проведенное моделирование динамики поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки при её записи световыми пучками с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм, формирующими интерференционную картину с контрастом $m = 1$ в микроструктурированных образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с диффузионным легированием № 4, № 5 и № 6 показало, что она имеет немонотонный характер. Максимум амплитуды первой пространственной гармоники, в некоторый момент времени t_m составляющий $0,219 E_{phv}^m$, имеет место на границе кристалла $x = 0$. Качественно такой же характер временной эволюции имеет место и для образцов № 8 и № 9 с объемным легированием ионами меди. Получено, что максимальные значения амплитуды первой пространственной гармоники поля пространственного заряда на поверхности пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза № 4, № 5 и № 6 с диффузионным легированием можно оценить, как $E_1^{max}(0, t_m) \approx 4,2 \cdot 10^6$, $2,2 \cdot 10^6$ и $0,81 \cdot 10^6$ В/м, соответственно.

2. Проведенные эксперименты показали, что с использованием фоторефрактивных голограмм с пространственным периодом $\Lambda = 45$ мкм, сформированных записывающими световыми пучками с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм в диффузионно-легированной медью пластине X-среза конгруэнтного

ниобата лития, возможна реализация управляемого световым излучением структурирования ансамблей из микро- и наночастиц, как имеющих диэлектрические свойства, так и обладающих металлическим типом проводимости. В микроструктурированном образце № 5 захват и агрегирование диэлектрических наночастиц композиционного порошка $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ с диаметром 40–80 нм наблюдается уже при времени записи 30 с как при суммарной интенсивности $J_0 = 636$ мВт/см², так и для $J_0 = 64$ мВт/см². При интенсивности $J_0 = 64$ мВт/см², для такого же времени записи, степень агрегирования диэлектрических микрочастиц синтетического алмаза с диаметром 0.5 мкм является сравнительно низкой, а для карбида титана с диаметром 4–8 мкм агрегация практически отсутствует.

3. Обнаружено, что при низкой суммарной интенсивности J_0 записывающих фоторефрактивную решетку пучков, составлявшей 64 мВт/см², более отчетливо проявляются неоднородности сил, действующих на частицы, чем при интенсивности $J_0 = 636$ мВт/см. Наблюдаемое при $J_0 = 64$ мВт/см² уменьшение степени агрегации частиц в центре освещаемой области с радиально-симметричным гауссовым распределением интенсивности можно связать с наличием в её пределах отталкивающих частицы сил, связанных с нулевой пространственной гармоникой формирующегося за счет фотовольтаического эффекта электрического поля фоторефрактивной решетки. В тоже время, в периферических областях, разнесенных по координате z (вдоль полярной оси S), поле нулевой пространственной гармоники, при гауссовом распределении интенсивности для каждого из записывающих пучков, создает силы, притягивающие частицы к поверхности образца $x = 0$.

4. Наблюдаемое в микроструктурированном образце № 5 уменьшение степени агрегации микро- и наночастиц в области максимума в распределении интенсивности как единственного записывающего лазерного пучка, имеющего радиально-симметричное распределение интенсивности, так и двух таких пучков, формирующих фоторефрактивную решетку, связано с неоднородным

знакопеременным распределением сил, создаваемых вдоль полярной оси S на поверхности $x = 0$ электрическим полем нулевой пространственной гармоники $E_0(x, z, t)$.

5. Проведенный анализ распределения диэлектрофоретических сил, индуцированных засветкой одномерным гауссовым световым пучком над поверхностью пластины X-среза ниобата лития, диффузионно-легированной фотовольтаически активной примесью, принимающий во внимание только преобладающую в кристалле компоненту электрической напряженности поля пространственного заряда $E_z(x, z) = E(x, z)$, наводимую одномерным гауссовым пучком, показал, что он не описывает экспериментально наблюдаемого распределения частиц порошка $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ при засветке микроструктурированного образца $LiNbO_3:Cu$ № 5 лазерным пучком Гаусса с радиальной симметрией. Расхождение результатов анализа с экспериментальными данными может быть связано как с принятыми приближениями, так и с неприменимостью рассматриваемой диэлектрофоретической модели захвата частиц для поля пространственного заряда, создающего соответствующие силы над поверхностью неполярного X-среза кристалла за счет фотовольтаического механизма перераспределения заряда.

6. Проведенные экспериментальные исследования агрегирования наночастиц электрическим полем, создаваемым в микроструктурированном образце $LiNbO_3:Cu$ № 5 при его засветке эллиптическими гауссовыми пучками показали, что в центральной части освещенной области концентрация агрегируемых наночастиц порошка с композицией $90\%Al_2O_3+10\%CeO_2$ является минимальной при всех используемых значениях экспозиции, приводящих к его неравномерному осаждению на поверхность кристалла $x = 0$. Отсутствие соответствия между результатами эксперимента с эллиптическими гауссовыми пучками и моделью, принимающей во внимание только преобладающую в кристалле компоненту электрической напряженности поля пространственного заряда $E_z(x, z) = E(x, z)$,

наводимую одномерным гауссовым пучком, может быть связано как с пренебрежением нормальной к границе кристалла составляющей электрического поля $E_x(x, z)$, так и с неприменимостью диэлектрофоретической модели к захвату диэлектрических нано- и микрочастиц электрическим полем, создаваемым световыми пучками над поверхностью неполярного X-среза кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ за счет фотовольтаического механизма перераспределения заряда.

ГЛАВА 5 ДИНАМИКА ПИРОЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ГЕНЕРАЦИИ ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИМИ ОБРАЗЦАМИ НИОБАТА ЛИТИЯ

Как отмечалось выше в подразд. 1.2, физические явления, проявляющиеся при эмиссии электронов из сегнетоэлектрических кристаллов вследствие фотогальванического и пироэлектрического эффектов, являются предметом изучения и дискуссий до настоящего времени. В пироэлектрических источниках электронов ток эмиссии может генерироваться в виде импульсов с длительностью, существенно меньшей, чем 1 с [50], что представляет значительный интерес для их приложений в импульсных генераторах рентгеновского излучения. Комплексная обобщающая теория пироэлектрических источников электронов, позволяющая объяснить данное явление, в настоящее время слабо разработана и требует дальнейшего развития. Доза выходного рентгеновского излучения, генерируемого разработанными к настоящему времени пироэлектрическими источниками, является недостаточной для полноценной медицинской диагностики и других приложений. Это связано со сравнительно малой суммарной дозой электронов, излучаемых пироэлектрическими элементами за один цикл нагрев – охлаждение. Таким образом, важными задачами представляются изучение физических явлений, имеющих место при генерации электронных пучков пироэлектрическими источниками сильных электрических полей, и оптимизация параметров устройств, основанных на их использовании.

В настоящей главе представлены результаты работ автора [135–140], выполненных совместно с Шандаровым С.М., Арестовым С.И., Орликовым Л.Н. и другими членами научной группы, по исследованию в микросекундном и наносекундном диапазоне динамики пироэлектрической эмиссии электронов с использованием образцов Z-среза ниобата лития.

5.1 Пироэлектрическая генерация электронных пучков и рентгеновского излучения монокристаллическими образцами ниобата лития при давлении в форвакуумном диапазоне

Как отмечалось в подразд. 1.2, термостимулированная электронная эмиссия из образцов пироэлектрического кристалла ниобата лития наблюдалась при давлениях от $\sim 10^{-6}$ Торр до атмосферного. При этом она сопровождалась генерацией рентгеновского излучения (см., например, [41–45, 47, 49]). В настоящем подразделе представлены результаты работ автора [135–140], выполненные совместно с Шандаровым С.М., Арестовым С.И., Орликовым Л.Н., по исследованию динамики пироэлектрической генерации электронных пучков монокристаллическими образцами ниобата лития в микросекундном диапазоне, при давлении $\sim 10^{-2}$ Торр, а также по регистрации сопровождающей такую генерацию рентгеновского излучения.

5.1.1 Экспериментальная установка и методика эксперимента при давлении в форвакуумном диапазоне

При исследовании динамики пироэлектрической генерации электронного пучка при давлении $\sim 10^{-2}$ Торр были использованы 2 кристалла Z-среза ниобата лития с оптически полированными гранями: нелегированный образец цилиндрической формы с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм и диаметром 13 мм и объемно-легированный медью образец в виде бруска с толщиной $h_{cr} = 3,6$ мм и поперечными размерами $10,5 \times 20,0$ мм².

Схема разработанной совместно с Арестовым С.И. экспериментальной установки показана на рисунке 5.1. Используемый образец ниобата лития 5 нагревался и охлаждался с помощью элемента Пельтье 7, на который подавалось напряжение от низковольтного линейного источника питания 10 модели НУ3005-3. Нагревание и последующее охлаждение кристаллов происходило в

диапазоне температур от 1 °С до 100 °С в течение 180 с. Теплоотвод осуществлялся с помощью охлаждаемого водой радиатора 8. Температура исследуемого образца измерялась термопарой 4 типа «К» (хромель-алюмель), подключенной к мультиметру 11 модели МУ-64 S-line. Исследуемый образец устанавливался на медную пластину 6, при этом данная пластина и элемент Пельтье были соединены между собою теплоэлектропроводящей пастой для обеспечения тепловой и электрической проводимости.

Для исследования динамики генерации электронного пучка на расстоянии $h_{vg} = 15$ мм от свободной поверхности кристалла устанавливался анод, в виде титановой мишени 2 с толщиной 20 мкм, а для регистрации генерируемого рентгеновского излучения сразу за анодом 2 размещалась стальная сетка 12 из проволоки с толщиной 0.3 мм, имеющая размер ячейки 1×1 мм² и чувствительная в синей области спектра рентгеновская пленка 13 марки Carestream Health (Kodak) MXBE film. Указанные выше элементы 2, 4–8 и 12, 13 вместе с сопротивлением нагрузки с величиной $R_l = 10$ Ом в виде резистора типа 1ВЗР8 устанавливались в вакуумной камере 3. Для наблюдения динамики пироэлектрической генерации сопротивление нагрузки соединялось с осциллографом 1 с помощью высокочастотного кабеля марки НЕЭ4.851.081-5 с волновым сопротивлением 50 Ом и длиной 1 м, вакуумного приборного разъема 2РМГП18Б7Ш1Е2 и подключаемого к нему через кабельный разъем СР-50 кабеля той же марки длиной 30 см.

Внутренний объём камеры 3 откачивался до давления порядка 10^{-2} Торр через штуцер 9. Внешний вид элементов, размещаемых в вакуумной камере, и их расположение относительно друг друга, иллюстрируется рисунком 5.2.

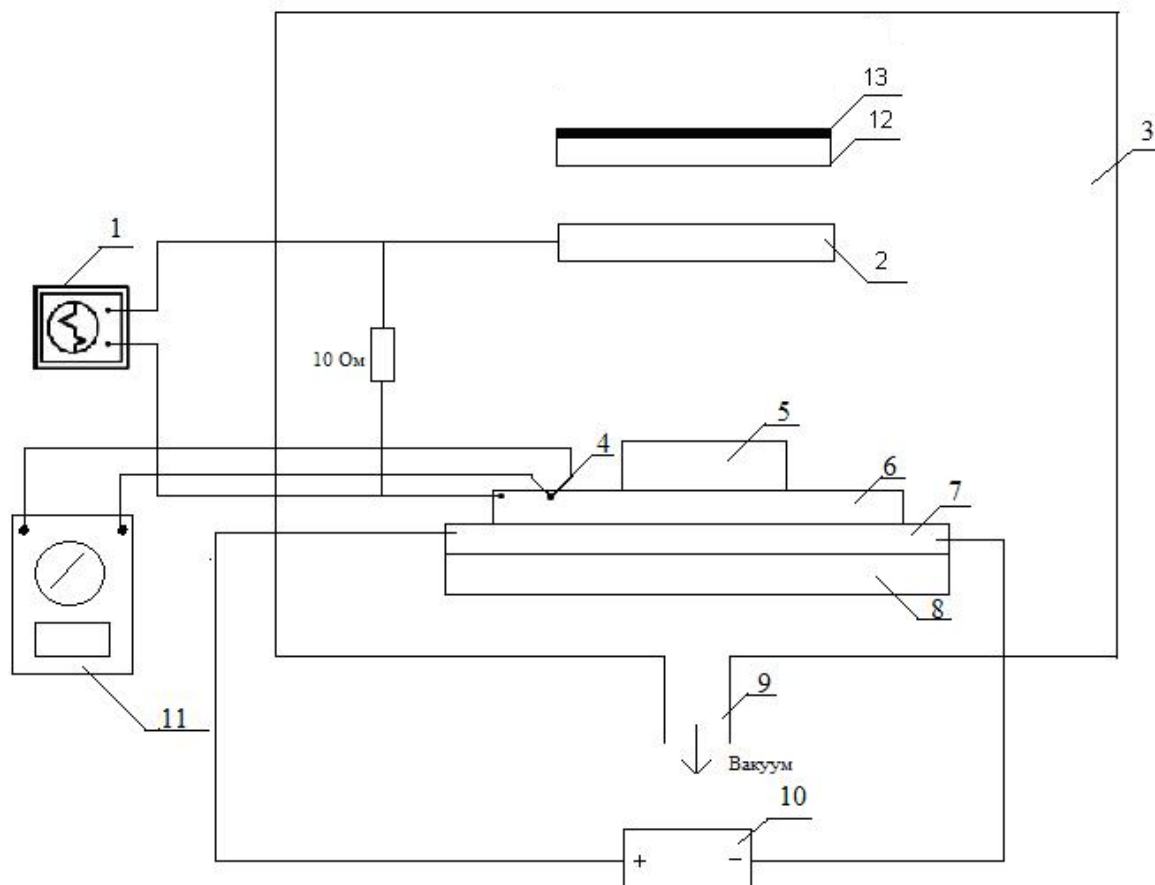


Рисунок 5.1 – Схема установки:

- 1 – осциллограф; 2 – анод (Ti, 20 мкм); 3 – вакуумная камера;
 4 – термопара; 5 – кристалл; 6 – медная пластинка; 7 – элемент Пельтье;
 8 – водяное охлаждение; 9 – штуцер для откачки внутреннего объема;
 10 – блок питания; 11 – мультиметр;
 12 – сетка (толщина 0,3 мм, размер ячейки 1×1мм);
 13 – рентгеновская пленка MXBE film

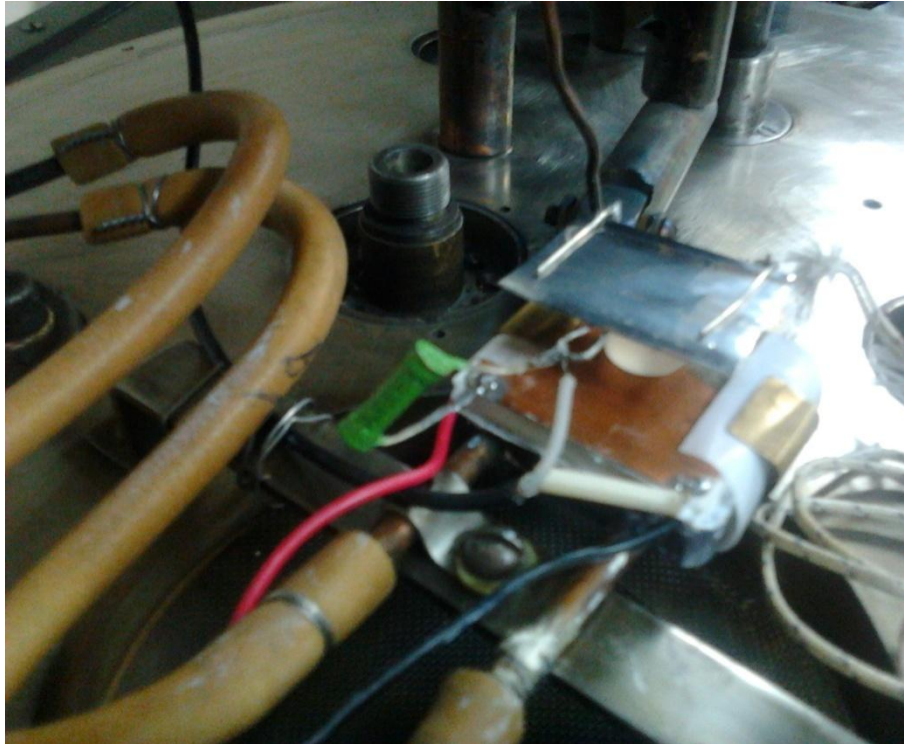
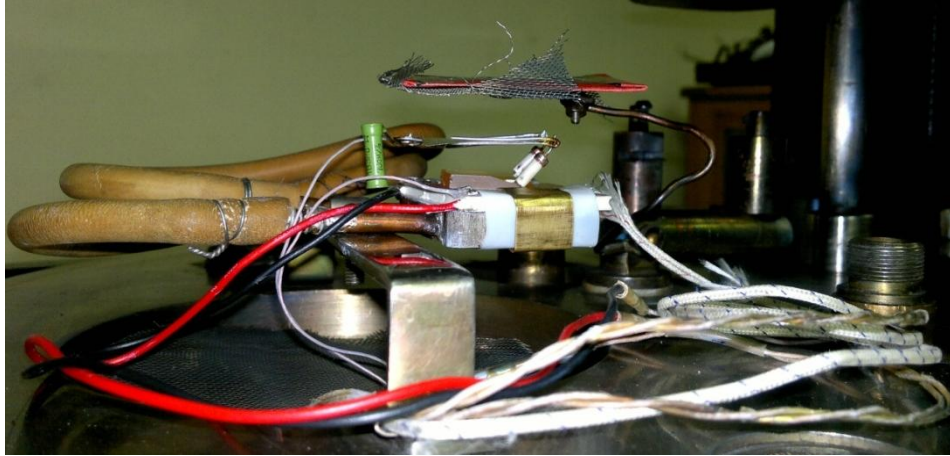


Рисунок 5.2 – Внешний вид установки

5.1.2 Динамика пирозлектрической генерации электронного пучка образцами Z-среза ниобата лития при давлении в форвакуумном диапазоне

В циклах нагревания и последующего охлаждения исследуемых образцов Z-среза ниобата лития, проводимых после откачки воздуха из вакуумной камеры до давления $\sim 10^{-2}$ Торр, в промежутке между верхней гранью кристалла 5 и анодом 2 (см. рисунок 5.1) происходила генерация электронного пучка, которая регистрировалась по току разряда, протекающего через сопротивление нагрузки

$R_l = 10$ Ом. Фотографии типичных осциллограмм, наблюдаемых в циклах нагрева и охлаждения нелегированного образца ниобата лития с цилиндрическим поперечным сечением и толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм, которые были зафиксированы с экрана цифрового осциллографа DS-1000 с полосой пропускания 150 МГц и входным сопротивлением 1 МОм в ждущем режиме, при развертке 5 мкс/дел, представлены на рисунке 5.3,а и 5.3,б соответственно.

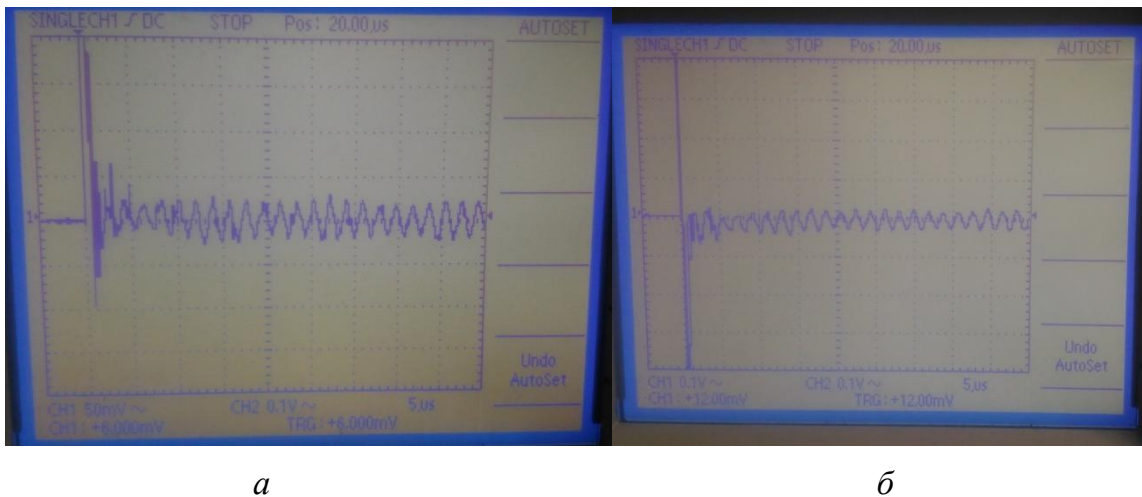


Рисунок 5.3 – Сигналы пирозлектрической эмиссии электронов

для цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм, полученные с осциллографом DS-1000:

а – в процессе нагрева от $T = 20$ °С до $T = 80$ °С (развертка 5 мкс/дел, масштаб 50 мВ/дел); *б* – в процессе охлаждения от $T = 80$ °С до $T = 6$ °С (развертка 5 мкс/дел, масштаб 100 мВ/дел)

Как следует из рисунка 5.3,а, в некоторый момент времени t_i при нагреве кристалла возникал короткий импульс тока положительной полярности со значительной амплитудой, сопровождавшийся далее сначала колебаниями, неразрешаемыми для используемого масштаба развертки, с периодом, не превышавшим долей мкс. После этого ток, протекающий через сопротивление нагрузки R_l , приобретал характер слабо затухающих периодических колебаний с частотой около 0,5 МГц и начальной амплитудой, которая может быть оценена как $U_{inv}/R_l \approx 2,5$ мА. Амплитуда тока разряда в начальный момент времени t_i

приводила к величине электрического напряжения на сопротивлении нагрузки R_l , превышающему 200 мВ, что соответствует току в цепи, включающей объем кристалла 5 и вакуумный промежуток между его верхней гранью и анодом 2, составляющему более 20 мА.

Наблюдавшийся здесь начальный импульс разряда может быть связан только с известным эффектом пирозлектрической генерации электронного пучка [39–43, 68, 70], подробно рассмотренным в подразд. 1.2.1 и 1.2.2. Однако он характеризуется длительностью, не превышающей, как следует из рисунка 5.3,а, 1 мкс. Следует отметить, что о пирозлектрической генерации импульсных электронных пучков такой длительности в кристаллах ниобата лития ранее не сообщалось. Колебательный характер тока, не разрешаемый на рисунке 5.3, а при $t - t_i < 2$ мкс, может быть связан с переотражениями импульсного сигнала в коаксиальном кабеле, связанными с отличием его волнового сопротивления (50 Ом) от входного сопротивления осциллографа (1 МОм) и сопротивления нагрузки (10 Ом).

Характерно, что частота слабо затухающих периодических колебаний, составляющих около 0.5 МГц, совпадает с собственной частотой продольных колебаний акустического резонатора $f_a = v_{at}/(2h_{cr})$, которым является исследуемый кристалл Z-среза ниобата лития с оптически полированными гранями с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм, где скорость продольной акустической волны вдоль оси Z, как известно из литературных данных [141], имеет значение $v_{at} = 7,33 \cdot 10^3$ м/с. Такие же слабо затухающие периодические колебания с частотой около 0,5 МГц наблюдались в данном образце и для цикла его охлаждения (см. рисунок 5.3,б).

Колебательный характер тока через сопротивление нагрузки при нагреве и охлаждении данного кристалла с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм фиксировался также с использованием аналогового запоминающего осциллографа С8-17 с полосой пропускания 1 МГц и входным сопротивлением 1 МОм. Типичные осциллограммы, зафиксированные в ждущем режиме, представлены на рисунке 5.4 при развертке 10 мкс/дел при нагреве и 5 мкс/дел при охлаждении.

Как и на рисунке 5.3, они демонстрируют колебания электронного тока с частотой около 0,5 МГц. Осциллограмма на рисунке 5.4,*а* показывает, что эти колебания с амплитудой, которую можно оценить как ~ 1 мА, наблюдаются на временном интервале с длительностью более 70 мкс.

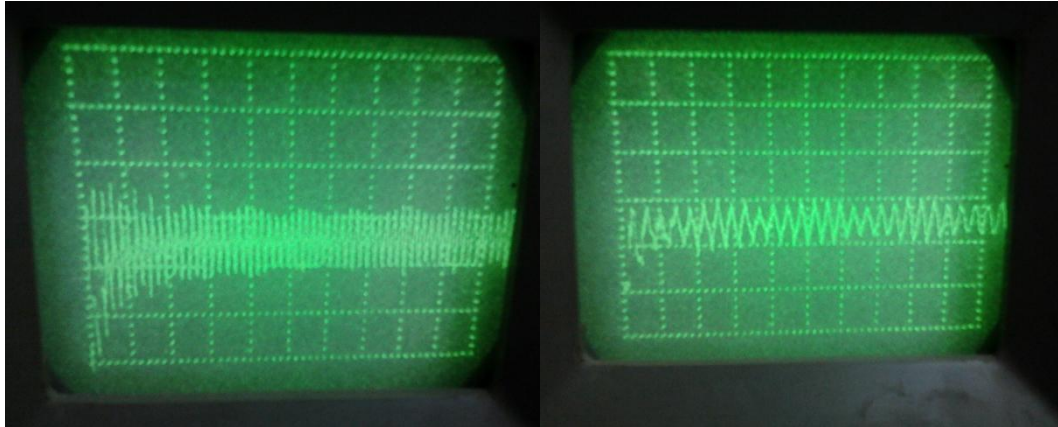
*а**б*

Рисунок 5.4 – Сигналы пирозлектрической эмиссии электронов для цилиндрического кристалла *Z*-среза ниобата лития с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм, полученные с осциллографом С8-17:

а – в процессе нагрева от $T = 20$ °С до $T = 98$ °С
(развертка 10 мкс/дел, масштаб 20 мВ/дел);

б – в процессе охлаждения от $T = 98$ °С до $T = 20$ °С
(развертка 5 мкс/дел, масштаб 20 мВ/дел)

Изменение толщины *Z*-среза кристалла должно приводить к соответствующему изменению частоты акустических колебаний. Результаты экспериментов для кристалла в виде бруска с толщиной $h_{cr} = 3.6$ мм и поперечными размерами $10,5 \times 20,0$ мм², проведенные с использованием в установке, описанной выше в подразд. 5.1 (см. рисунок 5.1), аналогового запоминающего осциллографа С8-17, представлены на рисунке 5.5.

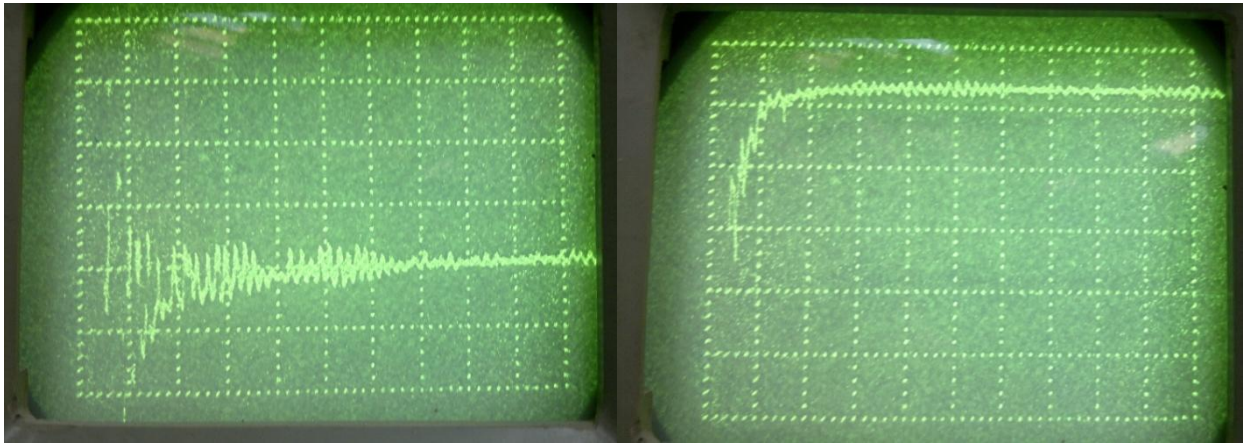


Рисунок 5.5 – Сигналы пирозлектрической эмиссии электронов для кристалла Z-среза $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, имеющего форму бруска с толщиной $h_{cr} = 3,6$ мм с поперечными размерами $10,5 \times 20,0$ мм², полученные с осциллографом С8-17:

a – в процессе нагрева от $T = 20$ °С до $T = 95$ °С
(развертка 5 мкс/дел, масштаб 20 мВ/дел);

б – в процессе охлаждения от $T = 95$ °С до $T = 3$ °С
(развертка 5 мкс/дел, масштаб 20 мВ/дел)

Анализ рисунка, затрудненный из-за значительно меньшей амплитуды колебаний тока, чем для кристалла цилиндрической формы, показывает, что его частота может быть оценена, как ~ 1 МГц.

Таким образом, наблюдаемые частоты колебаний тока в рассматриваемой схеме пирозлектрической генерации электронного пучка близки к основной частоте продольных колебаний используемых образцов ниобата лития. Механизм возбуждения этих колебаний может быть связан с обратным пьезоэлектрическим эффектом, за счет изменения напряженности электрического поля, происходящего при быстрой нейтрализации поверхностного заряда кристалла, индуцированного благодаря пирозлектрическому эффекту, на начальной стадии электронной эмиссии.

5.1.3 Регистрация рентгеновского излучения при пироэлектрической генерации электронного пучка образцами Z-среза ниобата лития для давления в форвакуумном диапазоне

Генерируемые в циклах нагрева и охлаждения электронные пучки сопровождалось рентгеновским излучением, суммарная доза которого в некоторых экспериментах с образцами LiNbO_3 и $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, была достаточной для фиксации на рентгеновской пленке. В описанных ниже экспериментах образцы с использованием элемента Пельтье 7 (см. рисунок 5.1) сначала нагревались от комнатной температуры $T_r = 20$ °С до $T_{max} = 100$ °С, а затем охлаждались до минимально реализуемой на данной установке температуры $T_{min} = -2$ °С. В течение эксперимента фиксировались значения температуры T_p , при которой осциллографом С8-17 в ждущем режиме синхронизации регистрировались импульсы тока электронной эмиссии. На рисунке 5.6 приведено изображение сетки 12, зафиксированное на проявленной пленке МХВЕ после воздействия на неё рентгеновского излучения, генерируемого шестью импульсами пироэлектрической эмиссии электронов в течение трех циклов «нагрев – охлаждение» цилиндрического образца ниобата лития с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм. В таблице 5.1 приведены значения температур T_p в каждом из циклов нагрева и охлаждения данного образца.



Рисунок 5.6 – Рентгеновское изображение сетки 12 (толщина 0,3 мм, размер ячейки 1×1 мм), полученное с использованием цилиндрического образца LiNbO_3 при трех циклах нагрев-охлаждение

Таблица 5.1 – Температуры T_p цилиндрического образца LiNbO_3 , при которых наблюдались импульсы пирозлектрической эмиссии в трех циклах «нагрев-охлаждение»

№ цикла	Нагрев	Охлаждение
1	–	1. 20 °С
2	2. 91 °С 3. 96 °С 4. 100 °С	–
3	5. 98 °С 6. 99 °С	–

Таким образом, для регистрации рентгеновского излучения, сопровождающего пирозлектрическую генерацию электронного пучка в рассматриваемой экспериментальной установке (см. рисунок 5.1) при давлении $\sim 10^{-2}$ Торр цилиндрическим образцом Z-среза ниобата лития с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм, потребовались три цикла «нагрев-охлаждение», в течение которых наблюдалось 6 эмиссионных импульсов.

На рисунке 5.7 представлено изображение сетки 12, зафиксированное на рентгеновской пленке МХВЕ в аналогичном эксперименте, проведенном с образцом $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, имеющим форму бруска с толщиной $h_{cr} = 3,6$ мм с поперечными размерами $10,5 \times 20,0$ мм². В таблице 5.2 приведены значения температур T_p в каждом из циклов нагрева и охлаждения данного образца.



Рисунок 5.7 – Рентгеновское изображение сетки 12 (толщина 0,3 мм, размер ячейки 1x1 мм), полученное с использованием $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ при семи циклах нагрев-охлаждение

Таблица 5.2 – Температуры T_p образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, при которых наблюдались импульсы пирозлектрической эмиссии в семи циклах «нагрев-охлаждение»

№ цикла	Нагрев, °C	Охлаждение, °C
1	1. 81 °C 2. 87 °C 3. 92 °C 4. 95 °C 5. 98 °C 6. 100 °C	7. 2 °C
2	8. 74 °C 9. 83 °C 10. 90 °C 11. 95 °C 12. 99 °C	–
3	13. 90 °C 14. 94 °C 15. 98 °C	16. 4 °C
4	17. 79 °C 18. 87 °C 19. 93 °C 20. 96 °C 21. 100 °C	22. 2 °C
5	23. 75 °C 24. 87 °C 25. 93 °C 26. 99 °C	27. 13 °C
6	28. 75 °C 29. 83 °C 30. 91 °C 31. 97 °C	32. 10 °C
7	33. 74 °C 34. 84 °C 35. 92 °C 36. 95 °C 37. 98 °C	–

Таким образом, при давлении $\sim 10^{-2}$ Торр и проведении семи циклов «нагрев-охлаждение» образца $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, имеющего форму бруска с толщиной

$h_{cr} = 3,6$ мм вдоль полярной оси Z и поперечные размеры $10,5 \times 20,0$ мм², наблюдалось 37 эмиссионных импульсов. Доза генерируемого в этом случае рентгеновского излучения была достаточной для получения изображения металлической сетки, представленного на рисунке 5.7.

5.2 Динамика пироэлектрической генерации электронного пучка образцами Z -среза ниобата лития при атмосферном давлении

Проведенные эксперименты по исследованию генерации электронного пучка образцами Z -среза ниобата лития при форвакуумном давлении, результаты которых были представлены выше в подразд. 5.1, показали, что наблюдаемые частоты колебаний тока (см. рисунки 5.3–5.5) в рассматриваемой схеме пироэлектрической генерации электронного пучка близки к основной частоте продольных колебаний используемых образцов ниобата лития. Механизм возбуждения этих колебаний связан с обратным пьезоэлектрическим эффектом, за счет изменения напряженности электрического поля, происходящего при быстрой нейтрализации поверхностного заряда кристалла, индуцированного благодаря пироэлектрическому эффекту, на начальной стадии электронной эмиссии.

Для регистрации этих колебаний использовались аналоговый осциллограф С8-17 (полоса пропускания $\Delta f = 1$ МГц) и цифровой осциллограф DS-1000 ($\Delta f = 150$ МГц), при скоростях развертки 5 мкс/дел. Как отмечалось выше в п. 5.1.1, возникающий при нагреве кристалла на начальной стадии короткий импульс тока имел значительную амплитуду и сопровождался колебаниями, неразрешаемыми для используемого масштаба развертки. Оценка его длительности показала, что она не превышает 100 нс. Для экспериментального исследования начальной стадии пироэлектрически индуцируемой электронной эмиссии возникает необходимость модернизации, представленной на рисунке 5.1 электрической схемы регистрации импульсов тока, с целью уменьшения вносимых ею искажений и устранения переотражений, связанных с большим

отличием входного сопротивления используемых осциллографов (1МОм) от волнового сопротивления коаксиального кабеля (50 Ом).

Использование эффектов пироэлектрической эмиссии электронов для практических приложений в устройствах, работающих при атмосферном давлении, позволит существенно упростить технологию их изготовления и улучшить эксплуатационные характеристики.

В настоящем подразд. 5.2 представлены результаты работ автора [142, 143], выполненных совместно с Орликовым Л.Н., Арестовым С.И., Шандаровым С.М., Буримовым Н.И., Авдоченко Б.И. и Ельчаниновым А.А. и посвященных разработке методики экспериментальных исследований динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения сегнетоэлектрического кристалла ниобата лития при атмосферном давлении. Разработанный диодный узел в коаксиальном исполнении, с согласующей электрической схемой для осциллографа с входным сопротивлением 50 Ом и с возможностью реализации циклов нагрев-охлаждение в температурном диапазоне от 25 до 80 °С, позволили зарегистрировать импульсы разряда, соответствующие генерации электронных пучков с длительностью фронта от 1 до 1,9 нс и с силой тока в максимуме до 600 мА.

5.2.1 Диодный узел для исследования динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития

Для регистрации пироэлектрической генерации импульсов разряда в циклах нагрева и охлаждения кристалла с длительностью фронта около 1 нс был разработан диодный узел в коаксиальном исполнении, схема которого в сборе представлена на рисунке 5.8. Он состоит из катодного (К) и анодного (А) блоков, соединяемых между собой при сборке с помощью сменных медных втулок (В).

Они имели высоту 20 мм и размер a , равный 1,5, 3 и 5 мм, что позволяло задавать расстояние от верхней грани кристалла 1 с толщиной $d = 7$ мм до анода 2, $h_g = 0,5, 2$ и 4 мм. На рисунке 5.8 показана сборка диодного узла с соединительной втулкой, имеющей размер $a = 3$ мм, при которой зазор $h_g = 2$ мм.

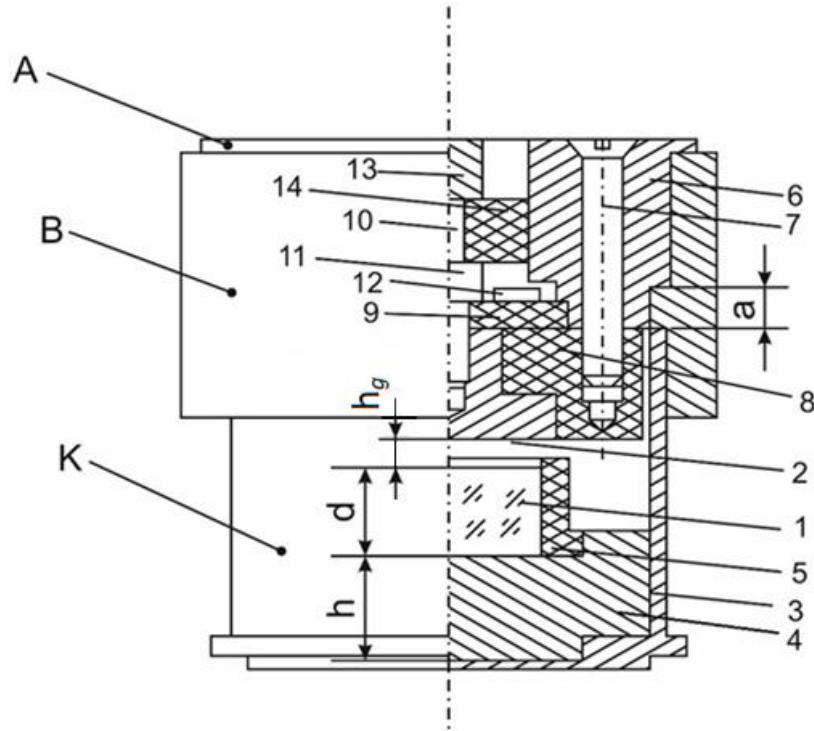
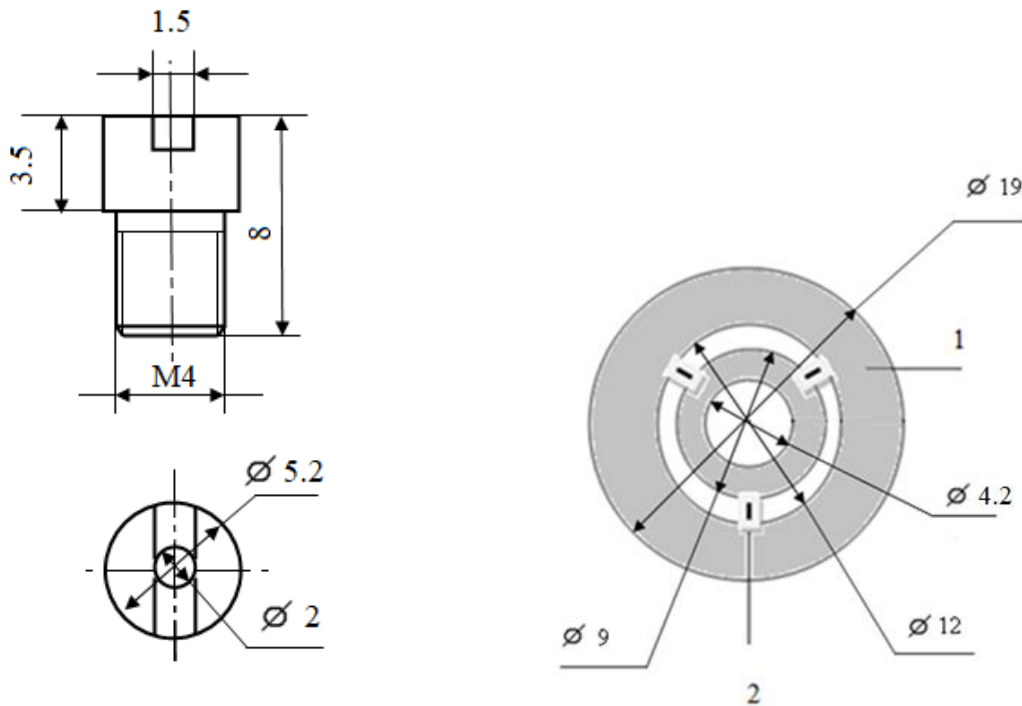


Рисунок 5.8 – Сборочный чертеж диодного узла

Катодный блок К состоит из медного цилиндрического стакана 3 с внутренним диаметром 30 мм, толщиной стенок 1,5 мм, толщиной дна 1,4 мм и высотой 25 мм. В стакане может размещаться медная шайба 4, имеющая внешний диаметр около 30 мм и высоту $h = 8$ мм, позволяющая исследовать кристаллы с толщиной $d = 7$ мм и менее. Для уменьшения краевых эффектов в центре дна цилиндра 3 и шайбы 4 имеется углубление цилиндрической формы для размещения кристалла 1, с диаметром 20 мм и глубиной 2 мм. С этой же целью боковая поверхность кристалла изолируется от воздушной среды фторопластовой втулкой 5 с толщиной стенок 2,3 мм.

Конструктивной основой анодного узла А является стальное кольцо 6, ограниченное снаружи двумя цилиндрическими поверхностями с диаметрами 33

и 37 мм. С помощью двух винтов 7 к данному кольцу крепится изолирующая шайба 8 из плексигласа с внешним диаметром 29 мм и толщиной 8,5 мм. Две внутренние цилиндрические поверхности шайбы, с диаметрами $D_a = 16$ и 8 мм и высотами 3,5 и 4,5 мм соответственно, позволяли плотно разместить в ней медный анод 2 с соответствующими этим поверхностям наружными диаметрами и высотами. Обращенная к кристаллу поверхность анода подвергалась тщательной полировке пастой ГОИ, а её кромка – шлифовке и полировке для скругления до радиуса около 2 мм. Для крепления анода к изолирующей шайбе и создания надежного контакта с узлом сопротивления нагрузки 9 и согласующим резистором 10 использовался медный винт 11, чертёж которого иллюстрируется рисунок 5.9,а.



а – чертёж соединительного
медного винта 11

б – 1 – фольгированный стеклотекстолит;
2 – чип-резистор 5,1 Ом

Рисунок 5.9 – Чертежи соединительного винта 11 (а)
и узла сопротивления нагрузки (б)

Один из резисторов 12 узла сопротивления нагрузки показан на рисунке 5.8, а внешний вид этого узла, выполненного в виде шайбы из односторонне

фольгированного стеклотекстолита, иллюстрируется рисунком 5.9,б. Наружное кольцо шайбы обеспечивало электрический контакт сопротивления нагрузки с корпусом диодного узла, за счет механического зажатия его между стальным кольцом 6 и изолирующей шайбой 8. Внутреннее кольцо узла сопротивления нагрузки 9 соединялось с анодом 2 с помощью винта 11. Изменение сопротивления нагрузки от 5,1 до 2,55 и 1,7 Ома осуществлялось пайкой в зазор между наружным и внутренним кольцами одного, двух и трех бескорпусных толсто пленочных резисторов (SMD-резисторов) с номиналом 5,1 Ома. Цилиндрическая форма головки винта 11 с наружным диаметром 5,2 мм в сочетании с цилиндрической внутренней поверхностью кольца 6 с внутренним диаметром 12 мм обеспечивала волновое сопротивление данного участка линии передачи, близкое к 50 Ом. Согласующий резистор цилиндрической формы типа MELF с диаметром 2,2 мм и номиналом 50 Ом контактировал снизу с головкой винта 11, а сверху – с медным цилиндрическим стержнем 13 с диаметром 5 мм. Волновое сопротивление участка, содержащего согласующий резистор, также было сравнительно близким к 50 Омам, за счет использования диэлектрической шайбы 14 из плексигласа с относительной диэлектрической проницаемостью $\epsilon_r = 3,5$. Далее стержень 13 стыковался с центральным электродом коаксиального разъема ВР-73Ф, корпус которого с помощью соединительной муфты монтировался на верхней поверхности стального кольца 6.

Фотография вида узла сопротивления нагрузки 9 сверху, в сборе с изолирующей шайбой из текстолита 8 и медного винта 11, контактирующего с анодом 2 (на фото не виден), для варианта с тремя питаемыми SMD-резисторами, представлена на рисунке 5.10.



Рисунок 5.10 – Внешний вид узла сопротивления нагрузки

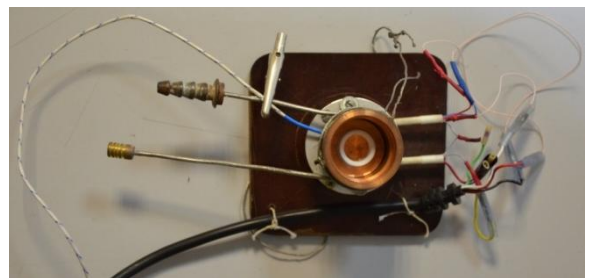
Фотография диодного узла, размещенного на цилиндрической подставке из алюминия, с подсоединенным к нему коаксиальным кабелем, представлена на рисунке 5.11,*а*. Холодильник в виде навитой на катодный блок К медной трубки с внешним диаметром 2,7 мм позволяет использовать в экспериментах охлаждение пироэлектрического кристалла проточной водой.



а



б



в

Рисунок 5.11 — Внешний вид блоков диодного узла:

а – катодный и анодный блоки, соединенные медной втулкой;

б – анодный блок с соединительным коаксиальным кабелем;

в – катодный блок, размещенный на цилиндрической подставке из алюминия

На рисунке 5.11,б и 5.11,в представлены фотографии анодного узла А с подсоединенным к нему коаксиальным кабелем, и вида сверху для катодного узла К с холодильником.

5.2.2 Методика экспериментального исследования динамики пирозлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития

Разработанный диодный узел в коаксиальном исполнении размещался на паяльной станции ZD-929А, позволявшей нагревать его от комнатной температуры (около 25 °С) до 80 °С в течение 15–20 минут. Температура диодного узла измерялась термопарой типа «К» (хромель-алюмель), размещенной на внешней стороне цилиндрического стакана, на высоте 3 мм от его дна, подключенной к мультиметру 11 модели МУ-64 S-line. В цикле охлаждения, происходящего естественным путем, температура диодного узла снижалась от 80 °С до 25 °С за время, составляющее 30 мин.

Коаксиальный разъем диодного узла соединялся со входом используемых в экспериментах осциллографов типа Keysight DSO-X 3102Т (1 ГГц, 5 Гвыб/с), и Tektronix MSO серии 6 (8 ГГц, 20 Гвыб/с) коаксиальным кабелем типа CP-50-74ПВ с волновым сопротивлением $\rho = 50$ Ом и длиной 70 см. При этом входное сопротивление осциллографов устанавливалось также равным 50 Ом. Электрическая схема регистрации тока разряда $I_d(t)$, включающая сопротивление нагрузки R_l , согласующий резистор $R_m = 50$ Ом, коаксиальную линию передачи с волновым сопротивлением 50 Ом и входное сопротивление осциллографа $R_{in} = 50$ Ом, показана на рисунке 5.12.

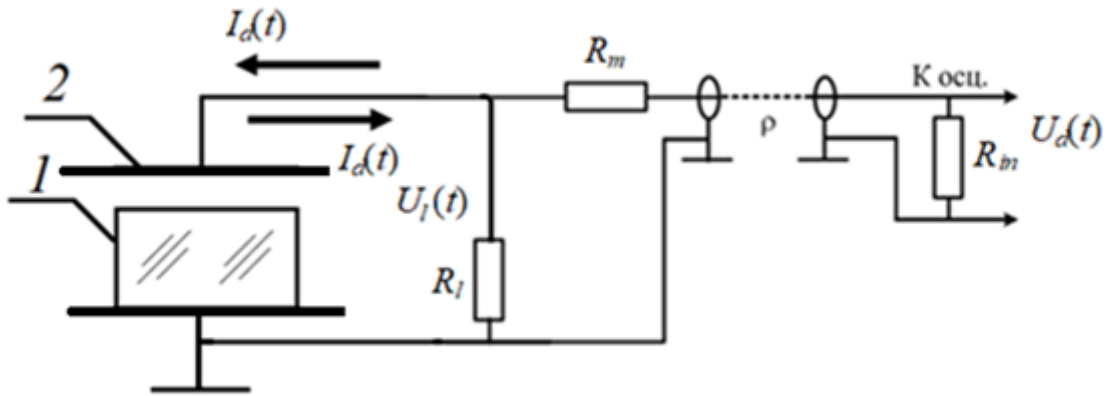


Рисунок 5.12 – Электрическая схема регистрации тока разряда:

1 – кристалл ниобата лития; 2 – анод

Следует отметить, что при изменении сопротивления нагрузки, в различных экспериментах принимавшего значение $R_l = 1,7, 2,55$ или $5,1$ Ом, суммарное сопротивление на входе коаксиальной линии передачи $R_\Sigma = R_l + R_m$ отличалось от волнового сопротивления $\rho = 50$ Ом и принимало значения $R_\Sigma = 51,7, 52,55$ или $55,1$ Ома. Таким образом, согласование данной схемы по входу было неполным, что должно привести к заниженным значениям измеряемого осциллографом напряжения $U_d(t)$ по сравнению со случаем идеального согласования, когда $\rho = R_\Sigma$. В пренебрежении таким рассогласованием, связь определяемого тока разряда $I_d(t)$ с измеряемым напряжением $U_d(t)$ может быть получена в следующем виде:

$$I_d(t) = U_l(t) \frac{(R_l + R_m + R_{in})}{R_l(R_m + R_{in})} = \frac{R_m + R_{in} + R_l}{R_{in}} \frac{1}{R_l} U_d(t). \quad (5.1)$$

При используемых параметрах резисторов R_l , R_m и R_{in} отношение $(R_l + R_m + R_{in}) / R_{in}$, обратное к коэффициенту деления напряжения нагрузки $U_l(t)$ в рассматриваемой схеме (рисунок 5.12), принимает значения 2,03, 2,05 и 2,10 при сопротивлениях нагрузки $R_l = 1,7, 2,55$ и $5,1$ Ом соответственно.

Внешний вид установки для исследования динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков с длительностью в наносекундном диапазоне в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития, включающий паяльную станцию ZD-929A, мультиметр модели MY-64 S-line для регистрации

температуры с помощью термопары и осциллограф (в данном случае типа Keysight DSO-X 3102T с полосой 1 ГГц и частота выборок 5 Гвыб/с), представлен на рисунке 5.13.



Рисунок 5.13 – Внешний вид установки для исследования динамики пьезоэлектрической генерации

Для регистрации осциллограмм в обоих циклах, нагрева и охлаждения, использовался ждущий режим с синхронизацией по нарастающему или спадающему фронту. В этом случае количество зарегистрированных импульсов при расстоянии между кристаллом 1 и медным анодом 2 (см. рисунок 5.8) $h_g = 0,5$ мм составляло более 50 при всех трех значениях используемых сопротивлений нагрузки R_l . Как правило, в цикле нагрева фиксировались импульсы отрицательной (ток $I_d(t)$ на схеме, представленной на рисунке 5.12, в этом случае течет справа налево, верхняя стрелка), а в циклах охлаждения – положительной полярности (ток $I_d(t)$ течет слева направо, нижняя стрелка), с амплитудами тока от 50 мА до 600 мА. Полученные осциллограммы $U_d(t)$ фиксировались в цифровом виде и обрабатывались с использованием формулы (5.1) в пакете Mathcad для расчетов динамики тока разряда $I_d(t)$.

5.2.3 Динамики пирозлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития

Импульсы тока разряда в цикле охлаждения при нагрузке $R_l = 5,1 \text{ Ом}$

Характерные осциллограммы тока разряда $I_d(t)$, представляющие цифровую выборку, полученную с использованием осциллографа Keysight DSO-X 3102T (1 ГГц, 5 Гвыб/с, развертка 10 нс/деление, режим синхронизации по нарастающему или спадающему фронту) и обработки в пакете Mathcad, для цикла охлаждения при сопротивлении нагрузки $R_l = 5,1 \text{ Ом}$, представлены точками на рисунке 5.14.

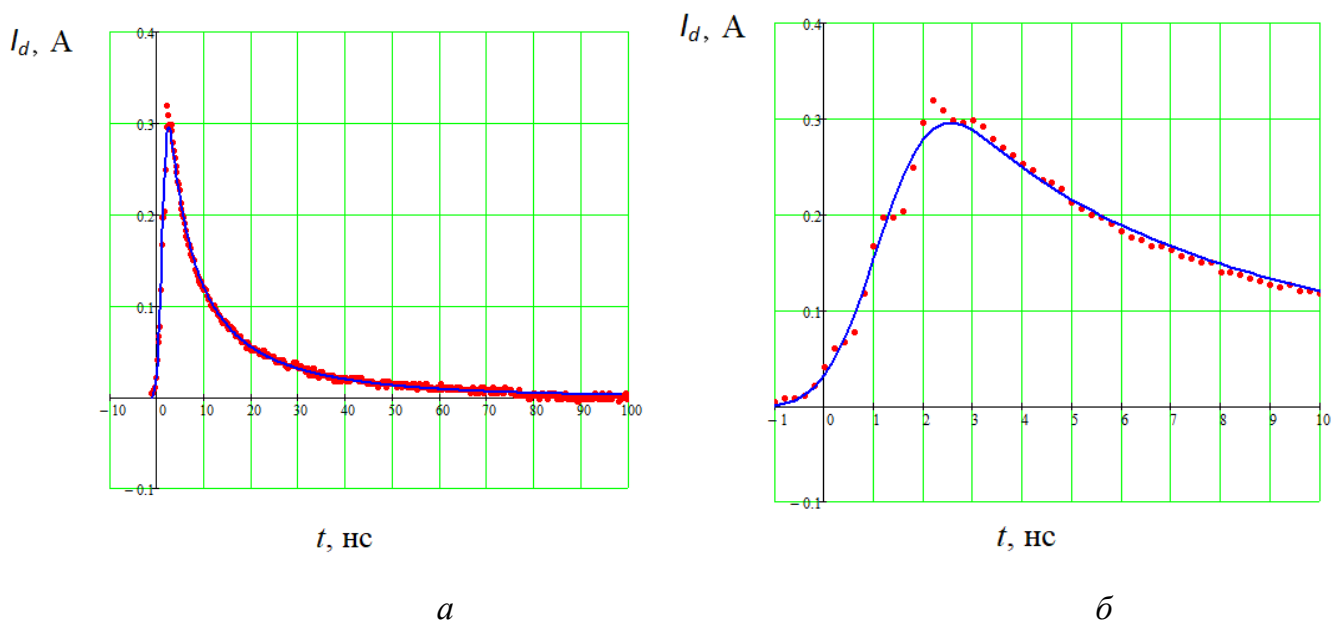


Рисунок 5.14 – Импульс тока разряда через сопротивление нагрузки $R_l = 5,1 \text{ Ом}$, регистрируемый при пирозлектрической эмиссии в цикле охлаждения при атмосферном давлении цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития на осциллографе Keysight DSO-X 3102T:

a – для интервала времени t от -1 нс до 100 нс ; b – для t от -1 нс до 10 нс .

Точки – эксперимент, сплошная кривая – расчет по формуле (5.2)

Всего для данного цикла охлаждения от температуры $T_{\max} = 80$ °С до $T = 43$ °С был зарегистрирован 41 импульс тока с амплитудой в основном максимуме от 60 до 350 мА. Представленные на рисунке 5.14 осциллограммы соответствуют импульсу тока, который наблюдался при температуре 48 °С, для фрагментов выборки от $t = -1$ нс до 100 нс (а) и от $t = -1$ нс до 10 нс (б).

Как видно из рисунка 5.14,б, на начальном участке развития тока разряда наблюдаются колебания, которые можно связать с наличием паразитной индуктивности L_s анодной части диодного узла, не учтенной на электрической схеме регистрации (см. рисунок 5.12). Она образует с емкостной составляющей C_s линии передачи от зазора между кристаллом и анодом к сопротивлению нагрузки R_1 , также не показанной на рисунке 5.12, колебательный контур с собственной частотой около 1 ГГц.

Проведенный анализ показал, что временная зависимость для импульсов тока разряда, наблюдаемых в цикле охлаждения, может быть удовлетворительно аппроксимирована следующим выражением:

$$I_d(t) = I_{pm} \left\{ 1 - \exp \left[- \left(\frac{t + t_i}{\tau_i} \right)^2 \right] \exp \left[- \left(\frac{t + t_f}{\tau_f} \right)^3 \right] \exp \left[- \left(\frac{t + t_g}{\tau_g} \right)^4 \right] \right\} \times \exp \left[-a \ln(1 + bt + ct^3) \right], \quad (5.2)$$

где параметры модели могут быть определены из экспериментальных данных подгонкой по методу наименьших квадратов [116]. Функция в фигурных скобках в выражении (5.2) описывает кинетику нарастания тока разряда, тогда как последний сомножитель характеризует его релаксацию. Показанные на рисунке 5.14 сплошными кривыми результаты аппроксимации были получены при следующих параметрах: $I_{pm} = 0,532$ А, $t_i = -1,206$ нс, $t_f = 0,927$ нс, $\tau_i = 6,79$ нс, $\tau_f = 3,08$ нс, $\tau_g = 3,44$ нс, $a = 1,603$, $b = 15,11 \cdot 10^7$ с⁻¹, $c = 14 \cdot 10^{21}$ с⁻³.

Интегрирование выражения (5.2) позволяет оценить заряд, переносимый через зазор между кристаллом и анодом за время t :

$$q_d(t) = \int_{t_i}^t I_d(t) dt. \quad (5.3)$$

Оценку для заряда $q_d(t)$ можно также получить из выборки экспериментальных данных для $I_d(t)$:

$$q_d(t_n) = \sum_{n_i}^n I_{dn} (t_{n+1} - t_n), \quad (5.4)$$

где $I_{dn} = I_d(t_n)$ и n_i – номер отсчета из выборки, соответствующий начальному времени t_i . Проведенные численные расчеты показывают, что для представленного на рисунке 5.14, а импульса тока ($t_i = -1,206$ нс, $n_i = 495$, $t_{n+1} - t_n = 0,2$ нс) переносимый заряд, соответствующий времени $t = 99,8$ нс ($n = 999$) может быть получен из формул (5.3) и (5.4) как $q_d(t) = 3,83$ нКл и $q_d(t_n) = 3,80$ нКл, соответственно.

Таким образом, использование аппроксимирующей формулы (5.2) позволяет удовлетворительно описать для цикла охлаждения пироэлектрического кристалла ниобата лития для разработанного диодного узла (см. п. 5.2.1) как динамику тока разряда $I_d(t)$, так и зависимость переносимого при этом заряда $q_d(t)$.

В таблице 5.3 представлены параметры 28 импульсов тока, наблюдаемых при охлаждении от $T_{\max} = 80$ °С до $T = 48$ °С. Как видно, амплитуда тока в основном максимуме I_{\max} изменяется от 60 до 350 мА, а переносимый заряд $q_d(t_n)$, рассчитанный из экспериментальных данных по формуле (5.4), от 1,3 до 5,7 нКл. Импульс тока разряда, показанный на рисунке 5.14, имеет номер № = 27.

Следует отметить, что для импульсов с номерами 5, 7 и 14 после основного максимума наблюдались вторичные импульсы разряда с амплитудами тока 223, 435 и 450 мА и с длительностью около 0,6 нс. Один из таких двойных импульсов (№ 14 в таблице 5.3), демонстрирующий для вторичного разряда осциллирующий характер с частотой около 1,1 ГГц, показан на рисунке 5.15.

Таблица 5.3. Параметры импульса разряда, наблюдаемого при охлаждении цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития от $T_{max} = 80$ °С до $T = 48$ °С.

№ имп.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
T , °С	67	65	64	64	63	62	61	60	59	59
I_{max} , мА	120	330	260	75	310	300	350	300	310	80
$q_d(t_n)$, нКл	2,8	4,7	3,1	1,9	4,5	3,3	4,4	4,1	3,3	1,7

№ имп.	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
T , °С	58	57	57	54	53	53	52	52	52	52
I_{max} , мА	320	60	300	330	300	300	100	210	300	65
$q_d(t_n)$, нКл	4,0	1,3	3,3	5,7	3,8	3,6	2,3	2,7	3,6	1,6

№ имп.	21	22	23	24	25	26	27	28
T , °С	51	50	50	50	49	48	48	48
I_{max} , мА	60	100	210	170	100	150	300	250
$q_d(t_n)$, нКл	1,3	1,8	3,3	2,8	1,6	2,1	3,8	2,7

Как видно из рисунка 5.14,б, время нарастания тока разряда от уровня $0,1I_{max}$ до $0,9I_{max}$ составляет около 1,9 нс. Эта величина может быть определена с ошибкой, вследствие недостаточно широкой полосы пропускания осциллографа Keysight DSO-X 3102T, составляющей величину $\Delta f = 1$ ГГц. Для оценки влияния полосы Δf на форму импульса тока разряда $I_d(t)$ были проведены эксперименты для циклов нагрева и охлаждения, аналогичные описанным выше, с использованием осциллографа Tektronix MSO серии 6 с полосой пропускания $\Delta f = 8$ ГГц и частотой дискретизации 20 Гвыб/с. Характерные осциллограммы, полученные с использованием данного осциллографа, представляющие цифровую выборку, обработанную в пакете Mathcad, для цикла охлаждения при сопротивлении нагрузки $R_l = 5,1$ Ом, представлены точками на рисунке 5.16.

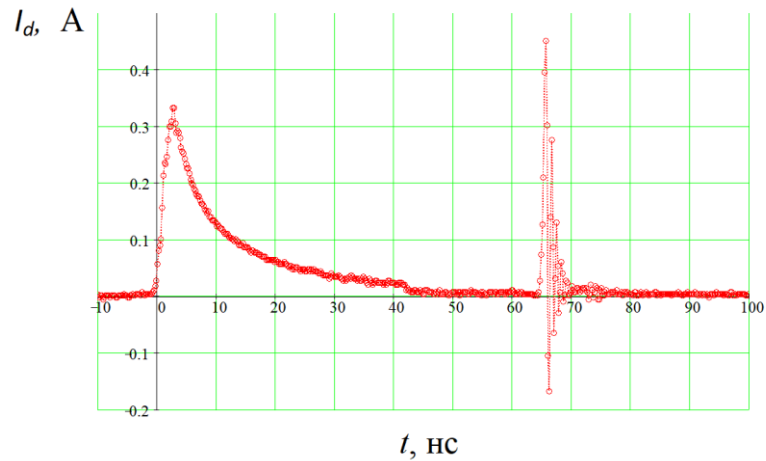


Рисунок 5.15 – Двойной импульс тока разряда через сопротивление нагрузки $R_l = 5,1$ Ом, регистрируемый при пироэлектрической эмиссии в цикле охлаждения при атмосферном давлении цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития до температуры 54 °С на осциллографе Keysight DSO-X 3102T

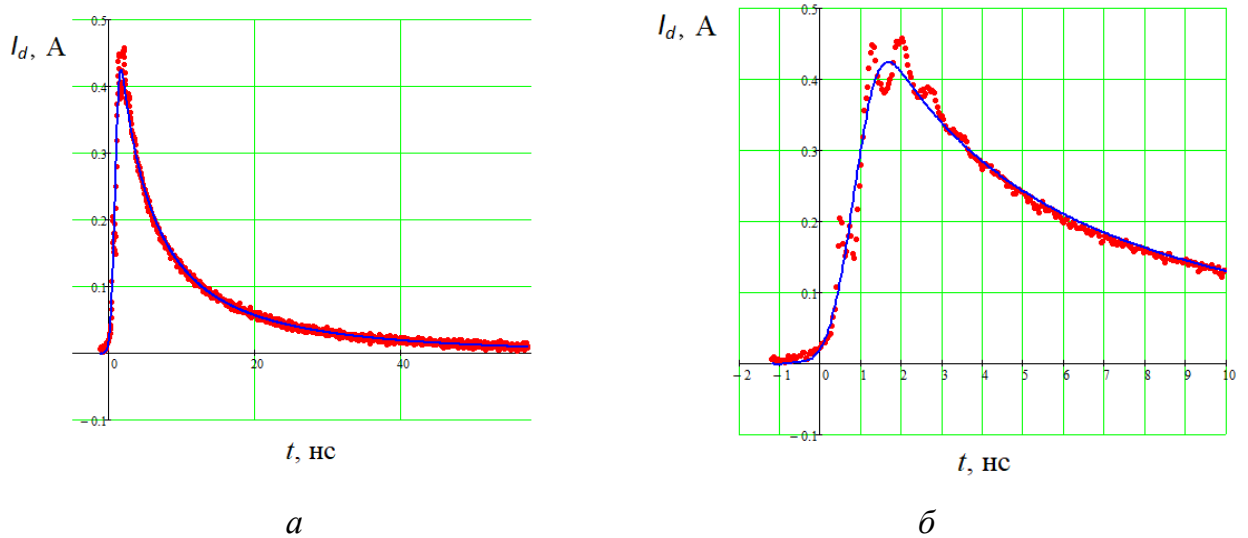


Рисунок 5.16 – Импульс тока разряда через сопротивление нагрузки $R_l = 5,1$ Ом, регистрируемый при пироэлектрической эмиссии в цикле охлаждения при атмосферном давлении цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития на осциллографе Tektronix MSO серии 6:

a – для интервала времени t от -1 нс до 60 нс; b – для t от -1 нс до 10 нс.

Точки – эксперимент, сплошная кривая – расчет по формуле (5.2)

Сплошные кривые на данном рисунке соответствуют аппроксимации экспериментальных данных выражением (5.2) при следующих параметрах:

$I_{pm} = 0,663$ А, $t_i = -1,15$ нс, $t_f = 0,59$ нс, $\tau_i = 11,9$ нс, $\tau_f = 2,58$ нс, $\tau_g = 1,79$ нс, $a = 1,628$, $b = 17,03 \cdot 10^7$ с⁻¹, $c = 16,6 \cdot 10^{21}$ с⁻³. Как следует из сравнения с параметрами аппроксимации, приведенными выше для случая регистрации импульса разряда осциллографом Keysight DSO-X 3102Т с полосой пропускания $\Delta f = 1$ ГГц, основные различия имеют место для постоянных времени τ_i , τ_f и τ_g . Эти различия приводят к тому, что, как следует из рисунка 5.16,б, время нарастания тока разряда от уровня $0,1I_{max}$ до $0,9I_{max}$ можно оценить как ~ 1 нс. Однако если длительность фронта импульса разряда с более высокой точностью определяется осциллографом с полосой $\Delta f = 8$ ГГц, то оценка величины переносимого заряд $q_d(t_n)$ на основе данных, полученных с более простым и дешевым осциллографом Keysight DSO-X 3102Т слабо отличается от результатов, достигаемых с моделью Tektronix MSO серии 6. Расчеты по формуле (5.4) показывают, что для представленного на рисунке 5.16 импульса с амплитудой тока $I_{max} \approx 420$ мА $q_d(t_n) = 4,1$ нКл для $t_n \approx 54$ нс, в то время как для импульса с амплитудой $I_{max} \approx 300$ мА (см. рисунок 5.14) такой расчет, проведенный для $t_n \approx 100$ нс, дает значение $q_d(t_n) = 3,8$ нКл.

В экспериментах с использованием осциллографа Tektronix MSO серии 6 в цикле охлаждения также регистрировались вторичные импульсы с амплитудами осцилляций до 60 мА и с частотой около 1,1 ГГц. Их осциллограммы были подобны представленной выше на рисунке 5.16. Следует также отметить наличие на некоторых импульсах тока разряда осцилляций с такой же частотой и с максимальной амплитудой, достигающей десятков мА. Характерная картина осцилляций, хорошо заметных на вершине импульса, иллюстрируется рисунком 5.16,б.

Таким образом, полученные в циклах охлаждения при атмосферном давлении цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития на сопротивлении нагрузки $R_l = 5,1$ Ом с использованием разработанного диодного узла (см. выше п.п. 5.2.1 и 5.2.2) и осциллографов Keysight DSO-X 3102Т ($\Delta f = 1$ ГГц) и Tektronix

MSO серии 6 ($\Delta f = 8$ ГГц) импульсы разряда не имеют существенных различий по амплитуде тока и величине переносимого заряда. Однако регистрируемую более широкополосным осциллографом Tektronix MSO серии 6 длительность переднего фронта импульсов, составляющую около 1 нс, следует оценивать как близкую к реальной.

Все регистрируемые импульсы для цикла охлаждения имеют положительную полярность, что соответствует переносу электронов от анода к обращенной к нему поверхности кристалла Z^+ и согласуется с закономерностями их переноса в циклах нагрев/охлаждение кристаллов Z -среза ниобата лития, описанными в [49].

Импульсы тока разряда в цикле нагрева при нагрузке $R_l = 5,1$ Ом

Характерные осциллограммы тока разряда $I_d(t)$, представляющие цифровую выборку, полученную с использованием осциллографа Keysight DSO-X 3102T (1 ГГц, 5 Гвыб/с, развертка 10 нс/деление, режим синхронизации по нарастающему или спадающему фронту) и обработки в пакете Mathcad, для цикла нагрева при сопротивлении нагрузки $R_l = 5,1$ Ом, показаны точками на рисунке 5.17.

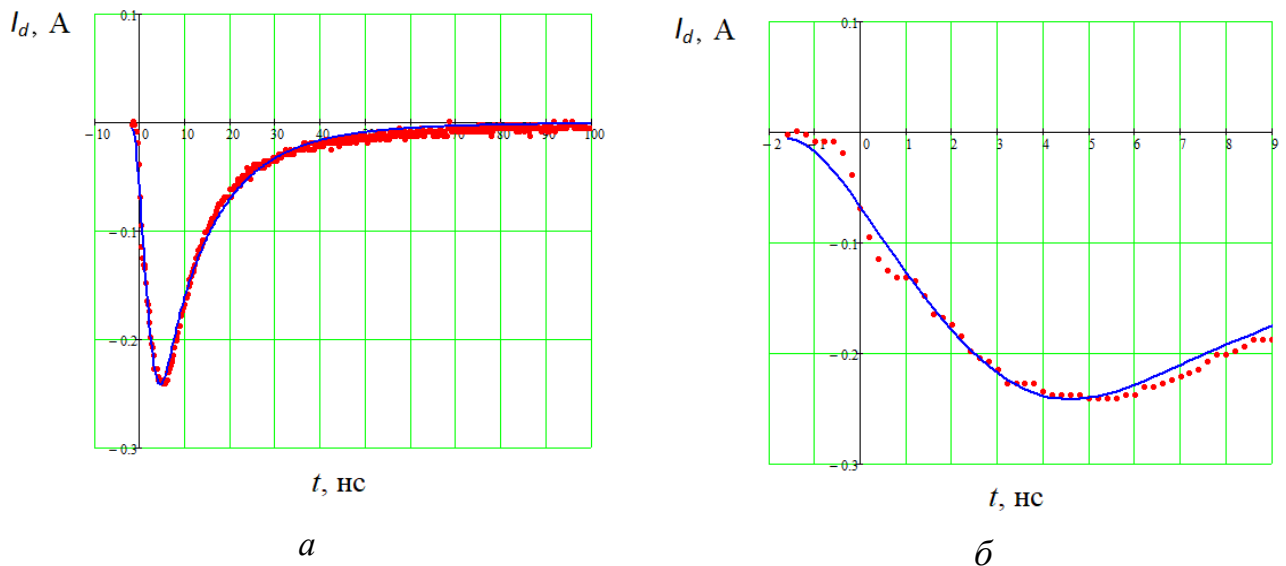


Рисунок 5.17 – Импульс тока разряда через сопротивление нагрузки $R_l = 5,1$ Ом, регистрируемый при пироэлектрической эмиссии в цикле нагрева при атмосферном давлении цилиндрического кристалла Z -среза ниобата лития на осциллографе Keysight DSO-X 3102T: *a* – для интервала времени t от -10 нс до 100 нс; *б* – для t от -2 нс до 9 нс. Точки – эксперимент, сплошная кривая – расчет по формуле (5.2)

Сплошные кривые на данном рисунке соответствуют аппроксимации экспериментальных данных выражением (5.2) при следующих параметрах: $I_{pm} = -0,474$ А, $t_i = -1,82$ нс, $t_f = 0$, $\tau_i = 4,64$ нс, $\tau_f = 85$ нс, $\tau_g = 5,64$ нс, $a = 1,161$, $b = 1,355 \cdot 10^8$ с⁻¹, $c = 184 \cdot 10^{21}$ с⁻³. В таблице 5.4 представлены параметры 28 импульсов тока, наблюдаемых при нагреве от $T_{min} = 25$ °С до $T = 52$ °С.

Таблица 5.4 – Параметры импульса разряда, наблюдаемого при нагреве цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития от $T_{min} = 25$ °С до $T = 52$ °С.

№ имп.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
T , °С	33	36	36	36	38	38	38	39	40	41
I_{max} , мА	75	240	131	101	71	55	224	65	171	217
$q_d(t_n)$, нКл	2,4	4,3	2,9	3,1	1,7	2	6	1,8	2,9	3,8

№ имп.	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
T , °С	42	42	44	44	44	44	45	46	46	47
I_{max} , мА	52	174	174	177	52	164	135	158	85	52
$q_d(t_n)$, нКл	1,3	3,1	3,1	2,9	1,3	2,8	2,3	2,5	1,8	1,4

№ имп.	21	22	23	24	25	26	27	28
T , °С	47	47	48	49	49	50	50	52
I_{max} , мА	131	171	148	161	154	135	194	168
$q_d(t_n)$, нКл	1,9	2,7	2,3	2,5	2,6	2,3	3,3	2,8

В экспериментах в цикле нагрева также регистрировались вторичные импульсы, имеющие осциллирующий характер. Один из них, отображаемый на осциллограмме цифровой выборкой через интервалы $\Delta t = 0,2$ нс в промежутке от 55 до 60 нс, представлен на рисунке 5.18. Амплитуду первой осцилляции можно оценить из осциллограммы, как ~ 190 мА, а для оценки частоты колебаний

необходимо использовать осциллограф с большими значениями полосы пропускания и частоты выборки.

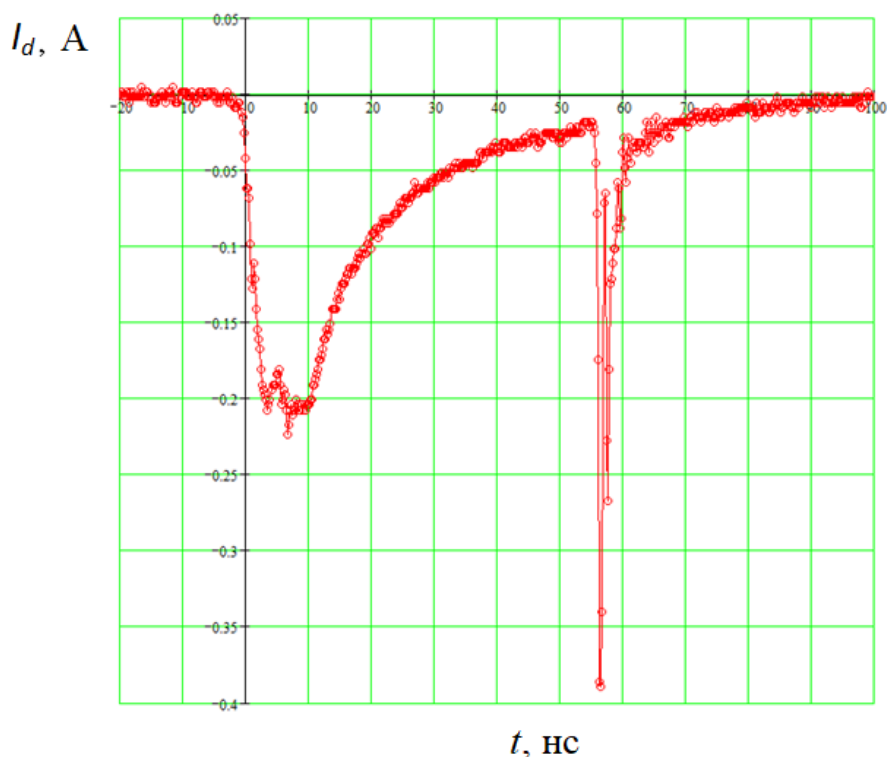


Рисунок 5.18 – Двойной импульс тока разряда через сопротивление нагрузки $R_l = 5,1$ Ом, регистрируемый при пирозлектрической эмиссии в цикле нагрева при атмосферном давлении цилиндрического кристалла Z -среза ниобата лития до температуры 54 °С на осциллографе Keysight DSO-X 3102T

Таким образом, полученные в циклах нагрева при атмосферном давлении цилиндрического кристалла Z -среза ниобата лития на сопротивлении нагрузки $R_l = 5,1$ Ом с использованием разработанного диодного узла (см. выше п.п. 5.2.1 и 5.2.2) и осциллографа Keysight DSO-X 3102T ($\Delta f = 1$ ГГц) импульсы разряда имеют отрицательную полярность, с максимальной амплитудой I_{max} , достигающей 240 мА, и переносимым зарядом от 1,3 до 4,3 нКл. Качественно картины спадания тока разряда после достижения его максимума в режимах охлаждения (см. рисунок 4.15) и нагрева (см. рисунок 4.17) имеют одинаковый характер, при этом наблюдаемая динамика тока разряда $I_d(t)$ и временная зависимость

переносимого заряда $q_d(t)$ в обоих случаях удовлетворительно аппроксимируются с использованием формулы (5.2). Отрицательная полярность всех регистрируемых импульсов разряда свидетельствует о том, что в цикле нагрева сегнетоэлектрического образца Z-среза ниобата лития с обращенной к аноду поверхностью Z^+ перенос электронов происходит от поверхности кристалла к аноду.

Импульсы тока разряда в цикле охлаждения при нагрузке $R_l = 2,55 \text{ Ом}$

Характерные осциллограммы тока разряда $I_d(t)$, представляющие цифровую выборку, полученную с использованием осциллографа Keysight DSO-X 3102T (1 ГГц, 5 Гвыб/с, развертка 2,5 нс/деление, режим синхронизации по нарастающему или спадающему фронту) и обработки в пакете Mathcad, для цикла охлаждения при сопротивлении нагрузки $R_l = 2,55 \text{ Ом}$, представлены точками на рисунке 5.19.

Всего для данного цикла охлаждения от температуры $T_{max} = 80 \text{ }^\circ\text{C}$ до $T = 25 \text{ }^\circ\text{C}$ при уровне триггера на осциллографе $\pm 100 \text{ мВ}$ было зарегистрировано 38 импульсов тока. Следует отметить, что температура, при которой возникали импульсы, от цикла к циклу нерегулярно сдвигалась к другим значениям.

В таблице 5.5 представлены только параметры импульсов тока с максимальными значениями, превышающими 240 мА. Они наблюдались при охлаждении от $T_{max} = 80 \text{ }^\circ\text{C}$ до $T = 25 \text{ }^\circ\text{C}$, при этом соответствующий переносимый за отображаемое на осциллограммах время t_m заряд $q_d(t_m)$ рассчитывался из экспериментальных данных по формуле (5.4).

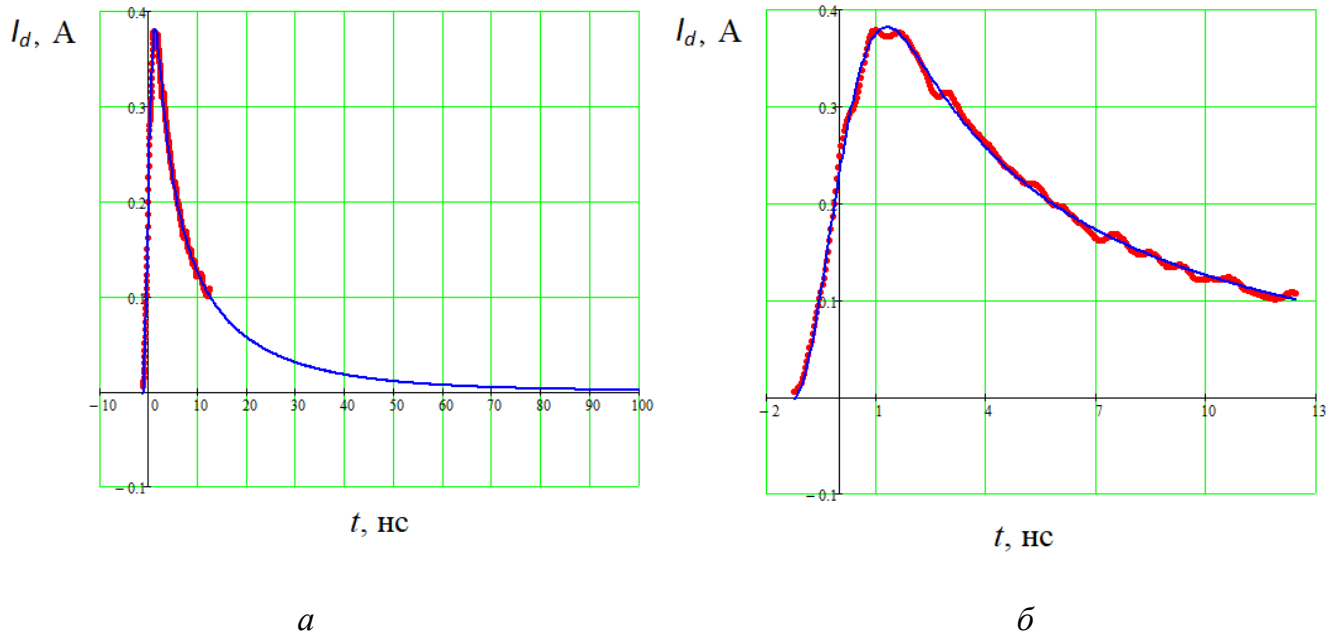


Рисунок 5.19 – Импульс тока разряда через сопротивление нагрузки $R_l = 2,55$ Ом, регистрируемый при пироэлектрической эмиссии в цикле охлаждения при атмосферном давлении цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития на осциллографе Keysight DSO-X 3102T:

a – для интервала времени t от -10 нс до 100 нс; *б* – для t от -2 нс до 13 нс.

Точки – эксперимент с максимальным временем регистрации $t_m = 12,46$ нс; сплошные кривые – расчет по формуле (5.2)

Таблица 5.5. Параметры некоторых импульсов разряда, наблюдаемых на сопротивлении нагрузки $R_l = 2,55$ Ом при охлаждении цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития от $T_{max} = 80$ °С до $T = 25$ °С

I_{max} , мА	382	296	361	354	381	275	78	367	351	343
$q_d(t_m)$, нКл	3	2,5	2,6	2,7	2,7	2,4	2,8	2,6	2,8	2,9

Показанные на рисунке 5.19 сплошными кривыми результаты аппроксимации временной зависимости тока разряда по формуле 5.2 были получены при следующих параметрах: $I_{pm} = 0,585$ А, $t_i = -1,26$ нс, $t_f = 0,79$ нс, $\tau_i = 1,8$ нс, $\tau_f = 3,1$ нс, $\tau_g = 6,2$ нс, $a = 1,3$, $b = 21,88 \cdot 10^7$ с⁻¹, $c = 80 \cdot 10^{21}$ с⁻³.

Проведенные численные расчеты показывают, что для представленного на рисунке 5.19,*а* импульса тока ($t_i = -1,2$ нс, $n_i = 288$, $t_{n+1} - t_n = 0,2$ нс) переносимый заряд, соответствующий времени $t_m = 12,46$ нс (конечный отсчет с $m = 639$) может быть получен из формул (5.3) и (5.4) как $q_d(t) = 2,776$ нКл и $q_d(t_n) = 2,769$ нКл, соответственно. Расчет переносимого заряда за время $t_n = 100$ нс (см. рисунок 5.19,*а*) с учетом результатов аппроксимации экспериментальных данных, проведенный с использованием формул (5.2) и (5.3), позволил получить оценку переносимого заряда $q_d(t_n) = 4,3$ нКл.

Из осциллограммы на рисунке 5.19,*б* длительность переднего фронта импульса разряда от уровня $0,1I_{max}$ до $0,9I_{max}$ может быть оценена как $1,5$ нс.

Таким образом, характер и параметры импульсов тока разряда (максимальные значения тока I_{max} , переносимый заряд $q_d(t)$ и длительность переднего фронта) для цикла охлаждения при использовании осциллографа Keysight DSO-X 3102T и разработанной диодной системы (см. п.п. 5.2.1 и 5.2.2) близки друг к другу для сопротивлений нагрузки $R_l = 2,55$ и $5,1$ Ом.

Импульсы тока разряда в цикле охлаждения при нагрузке $R_l = 1,7$ Ом

Характерные осциллограммы тока разряда $I_d(t)$, представляющие цифровую выборку, полученную с использованием осциллографа Keysight DSO-X 3102T (1 ГГц, 5 Гвыб/с, развертка 2,5 нс/деление, режим синхронизации по нарастающему или спадающему фронту) и обработки в пакете Mathcad, для цикла охлаждения при сопротивлении нагрузки $R_l = 1,7$ Ом, представлены точками на рисунке 5.20.

Всего для данного цикла охлаждения от температуры $T_{max} = 80$ °С до $T = 25$ °С при уровне триггера на осциллографе ± 100 мВ было зарегистрировано 34 импульса тока. Следует отметить, что температура, при которой возникали импульсы, от цикла к циклу нерегулярно сдвигалась к другим значениям.

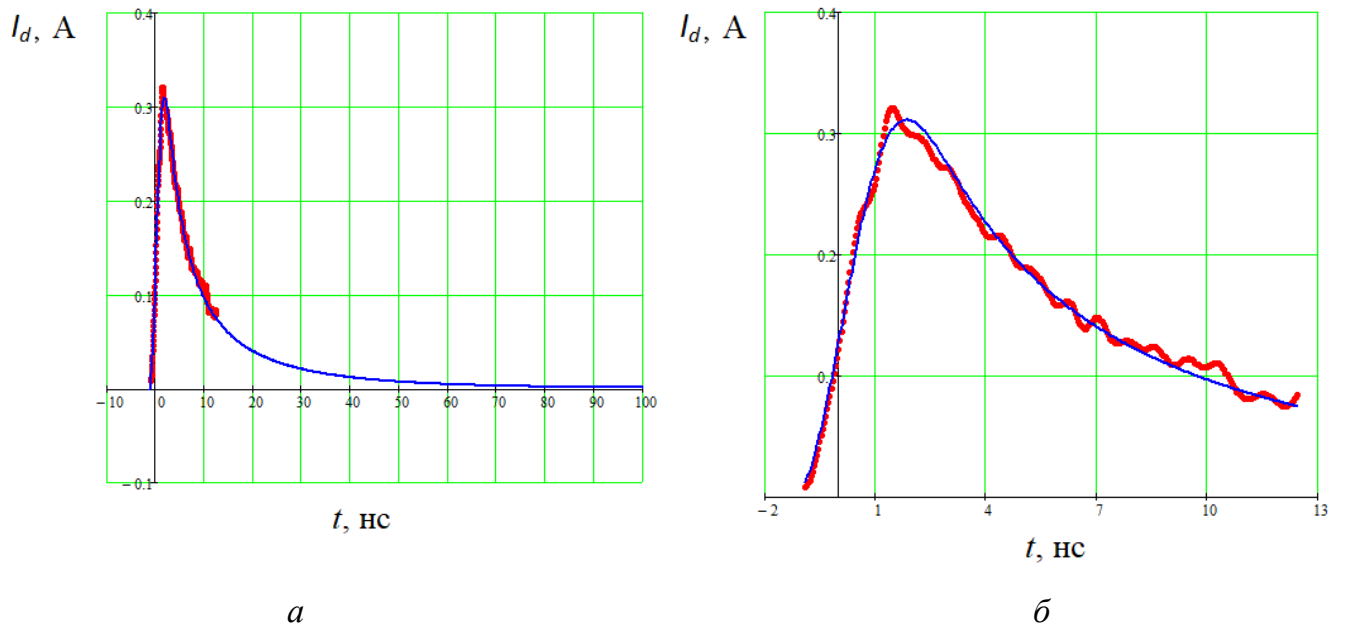


Рисунок 5.20 – Импульс тока разряда через сопротивление нагрузки $R_l = 1,7$ Ом, регистрируемый при пирозлектрической эмиссии в цикле охлаждения при атмосферном давлении цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития на осциллографе Keysight DSO-X 3102T:

а – для интервала времени t от -10 нс до 100 нс; б – для t от -2 нс до 13 нс.

Точки – эксперимент с максимальным временем регистрации $t_m = 12,46$ нс; сплошные кривые – расчет по формуле (5.2)

В таблице 5.6 представлены параметры отдельных импульсов тока. Они наблюдались при охлаждении от $T_{max} = 80$ °С до $T = 25$ °С, при этом соответствующий переносимый за отображаемое на осциллограммах время t_m заряд $q_d(t_m)$ рассчитывался из экспериментальных данных по формуле (5.4).

Таблица 5.6. Параметры некоторых импульсов разряда, наблюдаемых на сопротивлении нагрузки $R_l = 1,7$ Ом при охлаждении цилиндрического кристалла Z-среза ниобата лития от $T_{max} = 80$ °С до $T = 25$ °С

I_{max} , мА	311	311	277	292	290	306	319	307	204	290
$q_d(t_m)$, нКл	2,1	2,0	1,8	1,9	2,0	2,3	2,2	2,1	1,5	2,1

Показанные на рисунке 5.20 сплошными кривыми результаты аппроксимации временной зависимости тока разряда по формуле (5.2) были получены при следующих параметрах: $I_{pm} = 0,61$ А, $t_i = -1,22$ нс, $t_f = 0,94$ нс, $\tau_i = 2,68$ нс, $\tau_f = 3,1$ нс, $\tau_g = 32$ нс, $a = 1,569$, $b = 21,91 \cdot 10^7$ с⁻¹, $c = 40 \cdot 10^{21}$ с⁻³. Проведенные численные расчеты показывают, что для представленного на рисунке 5.20,а импульса тока ($t_i = -1,2$ нс, $n_i = 297$, $t_{n+1} - t_n = 0,2$ нс) переносимый заряд, соответствующий времени $t_m = 12,46$ нс (конечный отсчёт с $m = 639$) может быть получен из формул (5.3) и (5.4) как $q_d(t) = 2,204$ нКл и $q_d(t_n) = 2,199$ нКл, соответственно. Расчет переносимого заряда за время $t_n = 100$ нс (см. рисунок 5.20,а) с учетом результатов аппроксимации экспериментальных данных, проведенный с использованием формул (5.2) и (5.3), позволил получить оценку переносимого заряда $q_d(t_n) = 3,3$ нКл.

Из осциллограммы на рисунке 5.20,б длительность переднего фронта импульса разряда от уровня $0,1I_{max}$ до $0,9I_{max}$ может быть оценена как 1,8 нс.

Таким образом, характер и параметры импульсов тока разряда (максимальные значения тока I_{max} , переносимый заряд $q_d(t)$ и длительность переднего фронта) для цикла охлаждения при использовании осциллографа Keysight DSO-X 3102T и разработанной диодной системы (см. п.п. 5.2.1 и 5.2.2) близки друг к другу для сопротивлений нагрузки $R_l = 1,7, 2,55$ и $5,1$ Ом.

5.2.4 Анализ пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития

В отсутствие тока разряда электрическая схема части разработанного диодного узла, включающей кристалл ниобата лития 1 и заземленный через сопротивление нагрузки R_l анод 2 (см. рисунок 5.12), хорошо соответствует схеме пироэлектрического генератора с одним кристаллом [10], рассмотренной в главе

1 и изображенной на рисунке 1.5. При этом напряженность электрического поля в воздушном промежутке E_G , определяемая формулой (1.6), связывающей её с изменением температуры сегнетоэлектрического кристалла ΔT , с учетом принятых в данной главе 5 обозначений может быть переписана в виде

$$E_G = \frac{V}{h_g} = \frac{p\Delta T}{\varepsilon_0 (h_g \varepsilon_{33}^r / d + 1)}, \quad (5.5)$$

где V – разность потенциалов между верхней гранью кристалла и анодом и h_g – толщина разделяющего их воздушного промежутка (см. рисунок 5.8); d – толщина кристалла и p – его пирозлектрический коэффициент; ε_0 – электрическая постоянная и ε_{33}^r – относительная диэлектрическая проницаемость кристалла для поля вдоль полярной оси. Приобретаемый верхней гранью кристалла с изменением температуры суммарный поверхностный заряд может быть оценен, как

$$q_\Sigma = p\Delta T S_{cr} = p\Delta T \frac{\pi D_{cr}^2}{4}, \quad (5.6)$$

где S_{cr} – площадь поперечного сечения кристалла и D_{cr} – его диаметр.

Используя значения пирозлектрического коэффициента ниобата лития $p = -83 \times 10^{-6}$ Кл/(м²К) [144, 145] и его диэлектрической проницаемости $\varepsilon_{33}^r = 28,1$ [146], а также размеров кристалла и воздушного промежутка 0,5 мм, оценим по формулам (5.5) и (5.6) напряженность поля E_G и суммарный заряд q_Σ , соответствующие нагреву кристалла на $\Delta T = 8$ К. По данным таблицы 5.2, такой нагрев, от $T_{min} = 25$ °С до температуры $T = 33$ °С, приводит к появлению первого импульса разряда отрицательной полярности. Расчеты показывают, что при таком изменении температуры кристалла напряженность поля в воздушном промежутке должна достигать значения $E_G = 25$ кВ/мм, а суммарный заряд верхней грани – величины $q_\Sigma = 88$ нКл.

Как известно, пробой воздушного промежутка при атмосферном давлении происходит при напряженности электрического поля $E_G^a \geq 3$ кВ/мм [147]. Такое значение E_G^a должно достигаться, в соответствии с соотношениями (5.5) и (5.6), уже при величине отрицательного по знаку поверхностного заряда с плотностью $|\xi_{pyro}| = p\Delta T$, составляющей величину $|\xi_{pyro}| \geq 83$ мкКл/м², наводимой при изменении температуры кристалла на $\Delta T \geq 1$ К. При этом заряд верхней грани будет иметь значение $q_\Sigma \approx -11$ нКл. Из представленных выше экспериментальных данных следует, что первый импульс разряда наблюдается при значительно большем связанном заряде q_Σ поверхности кристалла $Z+$, обеспечиваемом пироэлектрическим эффектом. Это свидетельствует о наличии в исследуемых в данном подразд. 5.2 эффектах пироэлектрической генерации электронного пучка при атмосферном давлении компенсирующего процесса, качественно описанного в [148]. Он заключается в параллельном формировании на поверхности кристалла $Z+$ при его нагреве положительного по знаку компенсирующего заряда с плотностью ξ_{comp} . При этом изменение этого заряда во времени $\xi_{comp}(t)$ запаздывает по сравнению $\xi_{pyro}(t)$, что приводит к временной зависимости суммарного заряда $\xi(t) = \xi_{pyro}(t) + \xi_{comp}(t)$.

Таким образом, с учетом (5.5) получаем, что описанная выше пироэлектрическая генерация электронного пучка при атмосферном давлении должна происходить при выполнении условия

$$\frac{|p\Delta T(t)| - |\xi_{comp}(t)|}{\varepsilon_0 (h_g \varepsilon_{33}^r / d + 1)} \geq E_G^a, \quad (5.7)$$

как для цикла нагрева, так и при охлаждении сегнетоэлектрического кристалла ниобата лития.

5.3 Выводы

В настоящей главе представлены результаты работ автора [135-140,142,143], выполненных совместно с Шандаровым С.М., Арестовым С.И., Орликовым Л.Н. и другими членами научной группы, по исследованию в микросекундном и наносекундном диапазоне динамики пироэлектрической эмиссии электронов с использованием образцов Z-среза ниобата лития. Основные результаты состоят в следующем.

1. Разработана установка и методика экспериментального исследования динамики пироэлектрической эмиссии электронов в микросекундном диапазоне образцами Z-среза ниобата лития при форвакуумном давлении.

2. Проведенные при форвакуумном давлении эксперименты по исследованию генерации электронного пучка образцом Z-среза ниобата лития цилиндрической формы с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм и диаметром 13 мм и объемно-легированного медью образца в виде бруска с толщиной $h_{cr} = 3,6$ мм и поперечными размерами $10,5 \times 20,0$ мм² показали, что наблюдаемые в микросекундном диапазоне колебания тока разряда в рассматриваемой схеме пироэлектрической генерации электронного пучка происходят с частотой продольных акустических колебаний используемых образцов ниобата лития. Механизм возбуждения этих колебаний связан с обратным пьезоэлектрическим эффектом, за счет изменения напряженности электрического поля, происходящего при быстрой нейтрализации поверхностного заряда кристалла, индуцированного благодаря пироэлектрическому эффекту, на начальной стадии электронной эмиссии.

3. Разработан диодный узел для исследования динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития при атмосферном давлении.

4. Разработана установка и методика экспериментального исследования динамики пироэлектрической эмиссии электронов в наносекундном диапазоне образцами Z -среза ниобата лития при атмосферном давлении.

5. Проведенные с использованием разработанного диодного узла эксперименты по исследованию динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения цилиндрического нелегированного кристалла ниобата лития Z -среза с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм и диаметром 13 мм при атмосферном давлении в температурном диапазоне от 25 до 80 °С позволили зарегистрировать импульсы разряда, соответствующие генерации электронных пучков с длительностью около 15 нс, временем нарастания от 1 до 1,9 нс, с силой тока в максимуме до 600 мА, и с переносимым зарядом от 1,3 до 5,7 нКл.

6. Установлено, что при наблюдении эффекта пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков в наносекундном диапазоне в кристалле ниобата лития Z -среза при атмосферном давлении в отдельных случаях на осциллограммах регистрируются сопровождающие основной максимум вторичные импульсы, в виде осцилляций тока с амплитудами до 450 мА и с частотой около 1,1 ГГц.

7. Подтвержден экспериментально вывод авторов работы [148] о влиянии на порог генерации электронных пучков в циклах нагрева и охлаждения кристаллов ниобата лития при атмосферном давлении не только связанного пироэлектрического заряда $\xi_{pyro}(t)$ поверхности кристалла Z^+ , но и параллельного формирования на ней обратного по знаку компенсирующего заряда с поверхностной плотностью $\xi_{comp}(t)$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные результаты диссертационной работы заключаются в следующем:

1. В процессе практической реализации поверхностного легирования ионами меди пластин X-среза конгруэнтного ниобата лития отработаны технологические процессы высокотемпературной диффузии из металлических пленок, сформированных магнетронным напылением, термовакuumным напылением, комбинацией ионной имплантации и магнетронного распыления, а также из оксидных пленок, полученных методом золь-гель синтеза. Получено, что в рамках модели твердотельной диффузии из мгновенного поверхностного источника её коэффициент D_{Cu}^X изменяется, в зависимости от метода нанесения пленок, из которых она осуществляется, от 0,38 до 0,77 мкм²/с.

2. Экспериментально реализованы микроструктуры LiNbO₃:Cu с гауссовым распределением ионов меди по координате x образцов, с полуширинами от ~220 до ~320 мкм, с максимальными значениями концентрации ионов Cu⁺ от $1,0 \cdot 10^{24}$ до $7,8 \cdot 10^{24}$ м⁻³ и Cu²⁺ – от $1,0 \cdot 10^{25}$ до $7,8 \cdot 10^{25}$ м⁻³.

3. Разработана методика эксперимента и установка для исследования динамики формирования фоторефрактивных микроструктур (решеток) с пространственными периодами от 2,44 до 45 мкм в пластинах LiNbO₃:Cu X-среза при засветке картиной интерференции с контрастом $m \approx 1$, создаваемой лазерными пучками с длиной волны $\lambda_w = 532$ нм.

4. Проведены экспериментальные исследования и теоретический анализ динамики формирования поля пространственного заряда фоторефрактивных решеток в пластинах LiNbO₃:Cu X-среза с диффузионным и объемным легированием, при их засветке картиной интерференции с контрастом $m \approx 1$, создаваемой плоскими световыми волнами. Получены соотношения, описывающие динамику формирования для пространственных гармоник напряженности электрического поля фоторефрактивных решеток в пластине X-среза на различных глубинах x от границы, учитывающие как распределения

концентрации ионов $C_{\text{Cu}^+}(x)$ и $C_{\text{Cu}^{2+}}(x)$, так и соответствующую зависимость суммарной интенсивности записывающих волн $J(x)$, обусловленную оптическим поглощением.

5. Подгонка полученных теоретических зависимостей под экспериментальные данные по динамике дифракционной эффективности фоторефрактивных решеток показала, что эффективные длины взаимодействия для считывающего пучка с длиной волны $\lambda_r = 655$ нм являются существенно меньшими, чем толщина используемых при диффузии Cu пластин LiNbO_3 X-среза. Полученные в результате подгонки значения констант Гласса для трех диффузионно-легированных образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, $G_e \approx 9,4 \cdot 10^{-12}$, $G_e \approx 2,8 \cdot 10^{-12}$ и $G_o \approx 10,3 \cdot 10^{-12}$ м/В, близки по порядку величины к значению $5,5 \cdot 10^{-12}$ м/В, приведенному в [28] для монокристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с объемным легированием.

6. Проведено численное моделирование динамики для амплитуды $E_1(x, t)$ первой пространственной гармоники электрического поля фоторефрактивной решетки при её записи плоскими световыми волнами ($\lambda_w = 532$ нм), формирующими интерференционную картину с контрастом $m = 1$ в образцах $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза с диффузионным и объемным легированием. Получено, что для реализации фотовольтаических пинцетов, где важную роль должна играть достигаемая на границе $x = 0$ амплитуда $E_1(0, t)$, наиболее перспективным является использование двух образцов с диффузионным легированием из металлических пленок с толщинами 900 и 400 нм, осуществляемым в течение 9 часов при температуре 1000 °С, а также объемно легированного образца с концентрацией ионов меди в зарядовом состоянии 2+, составляющей $7,88 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-3}$. Проведенные расчеты показали, что в данных образцах максимально достигаемые значения амплитуды поля можно оценить как $E_1^{\text{max}}(0, t_m) \approx 4,2 \cdot 10^6$, $2,2 \cdot 10^6$ и $2,1 \cdot 10^6$ В/м, соответственно.

7. Разработана методика экспериментального исследования агрегирования микро- и наночастиц электрическими полями, создаваемыми над поверхностью

пластин $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ X-среза вследствие фотогальванического механизма перераспределения заряда при их засветке как картиной интерференции двух лазерных пучков Гаусса с радиальной симметрией или с эллиптическим поперечным сечением, так и единственным гауссовым пучком такого типа. Экспериментально реализовано и исследовано фотовольтаическое структурирование ансамблей, состоящих из диэлектрических ($90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$; синтетический алмаз АСМ) микро- и наночастиц, а также из микрочастиц TiC с металлическим типом проводимости. Получено, что в образце $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, созданном диффузионным легированием из металлической пленки с толщиной 400 нм, захват и агрегирование диэлектрических наночастиц композиционного порошка $90\%\text{Al}_2\text{O}_3+10\%\text{CeO}_2$ с диаметром 40–80 нм полем фоторефрактивной решетки с пространственным периодом 45 мкм, создаваемым при засветке картиной интерференции лазерных пучков с контрастом $m \approx 1$ и средней интенсивностью $J_0 = 64 \text{ мВт/см}^2$ наблюдается уже при времени экспозиции $t = 30 \text{ с}$.

8. Проведен анализ распределения диэлектрофоретических сил, индуцированных над поверхностью пластины X-среза ниобата лития, диффузионно-легированной фотовольтаически активной примесью, принимающий во внимание только преобладающую в кристалле компоненту электрической напряженности поля пространственного заряда $E_z(x, z) = E(x, z)$, наводимую одномерным гауссовым пучком. Выполненные расчеты показали, что распределение диэлектрофоретического потенциала по координате z вдоль полярной оси пластины $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ для начального участка её экспозиции не согласуется с экспериментально наблюдаемым эффектом меньшей концентрации агрегируемых частиц в центральной области засвечивающего пучка, локализованной при $z = 0$. Расхождение результатов анализа с экспериментальными данными может быть связано как с принятыми приближениями, так и с неприменимостью рассматриваемой диэлектрофоретической модели захвата частиц электрическим полем,

создаваемым над поверхностью неполярного X -среза кристалла за счет фотовольтаического механизма перераспределения заряда.

9. При форвакуумном давлении проведены эксперименты по термическому воздействию на нелегированный монокристалл LiNbO_3 цилиндрической формы с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм и диаметром 13 мм и на объемно-легированный медью ниобат лития, имеющий вид бруска с толщиной $h_{cr} = 3,6$ мм и поперечными размерами $10,5 \times 20,0$ мм², с целью изучения в микросекундном диапазоне динамики пироэлектрической генерации электронного пучка. Получено, что ток разряда в этом диапазоне изменяется во времени с частотой продольных акустических колебаний используемых образцов полярного Z -среза ниобата лития. Механизм возбуждения этих колебаний связан с обратным пьезоэлектрическим эффектом, за счет изменения напряженности электрического поля, происходящего при быстрой нейтрализации поверхностного заряда кристалла, индуцированного благодаря пироэлектрическому эффекту, на начальной стадии электронной эмиссии.

10. Разработан диодный узел и установка для исследования динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения кристалла ниобата лития при атмосферном давлении, а также соответствующая методика эксперимента.

11. Проведенные с использованием разработанного диодного узла и установки эксперименты по исследованию динамики пироэлектрической генерации импульсных электронных пучков наносекундной длительности в циклах нагрева и охлаждения цилиндрического нелегированного кристалла ниобата лития Z -среза с толщиной $h_{cr} = 7,0$ мм и диаметром 13 мм при атмосферном давлении в температурном диапазоне от 25 до 80 °С позволили зарегистрировать импульсы разряда, соответствующие генерации электронных пучков с длительностью около 15 нс, временем нарастания от 1 до 1,9 нс, с силой тока в максимуме до 600 мА, и с переносимым зарядом от 1,3 до 5,7 нКл.

12. Экспериментально установлено, что при пирозлектрической генерации импульсных электронных пучков в наносекундном диапазоне в кристалле ниобата лития Z -среза при атмосферном давлении в отдельных случаях на осциллограммах регистрируются сопровождающие основной максимум вторичные импульсы, в виде осцилляций тока с амплитудами до 450 мА и с частотой около 1,1 ГГц.

13. Подтвержден экспериментально вывод авторов работы [148] о влиянии на порог генерации электронных пучков в циклах нагрева и охлаждения кристаллов ниобата лития при атмосферном давлении не только связанного пирозлектрического заряда поверхности кристалла Z^+ , но и параллельного формирования на ней обратного по знаку компенсирующего поверхностного заряда.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nakahama, K. Effect of electron focusing in X-ray source using LiTaO₃ crystal excited by Nd:YLF laser light / K. Nakahama [et al.] // Abstract of 26th Intern. Vacuum Nanoelectronics Conference (IVNC). - 2013. - P. 1-2.
2. Kisa, T. Electron emission from LiNbO₃ crystal excited by Nd:YLF laser and its X-ray source application / T. Kisa [et al.] // Abstract of Micro. Nano. Conference. 12D-11-44, November 2010.
3. Kisa, T. Electron emission from a lithium niobate crystal excited by ultra-violet laser / T. Kisa [et al.] // 22th International Vacuum Nanoelectronics Conference, Technical Digest. - 2009. - P. 151-152.
4. Kukhtarev, N. Generation of focused electron beam by pyroelectric and photogalvanic crystals / N. Kukhtarev [et al.] // J. Appl. Phys. - 2004. - V. 96, N. 11. - P. 6794-6798.
5. Mikio Takai, Toshiyuki Ishida. Патент US 20120027181, МПК H01J 35/02. X-ray generator and composite device using the same and x-ray generating method /; Заявлено 05.04.2010; Опубликовано 02.02.2012.
6. Нагайченко, В.И. Увеличение энергии электронов в пироэлектрическом ускорителе / В.И. Нагайченко [и др.] // Вопросы атомной науки и техники. Сер. «Ядерно-физические исследования»(50). - 2008. - № 5. - С.72-76.
7. Бабичева, Н.Г. Кинетика эмиссии электронов из ниобата лития / Н.Г.Бабичева [и др.] // Физика твердого тела. - 2009. - Т. 51, № 7. - С. 1385-1388.
8. Месяц, Г.А. Электронная эмиссия из сегнетоэлектрических плазменных катодов / Г.А. Месяц // Успехи физических наук. - 2008. - Т. 178, № 1. - С.85-108.
9. Brownridge, J. D. Self-focused electron beams produced by pyroelectric crystals on heating or cooling in dilute gases / J. D. Brownridge, S. M. Shafroth // Applied Physics Letters. - 2001. - V. 79, № 20. - P. 3364-3366.
10. Fullem, T. Z. Electrostatics of pyroelectric accelerators / T. Z . Fullem, Y. Danon // J. Appl. Phys. - 2009. - V. 106. - P. 074101.

11. Sandomirsky, V. The edge electric field of a pyroelectric and its applications / V. Sandomirsky [et al] // J. Appl. Phys. - 2006. - V.100. - P. 113722.
12. Kovaleski, S.D. Ultra-compact piezoelectric transformer charged particle acceleration / S.D.Kovaleski [et al] // Proceedings Power MEMS. - 2009. -P. 399-402.
13. Gall, B.B. Investigation of the Piezoelectric Effect as a Means to Generate X-Rays / B.B. Gall [et al] // IEEE Transactions on Plasma Science. - 2013. - V. 41, № 1. - P. 106-111.
14. Norgard, P. An electrooptic probe to determine internal electric fields in a piezoelectric transformer / P. Norgard , S. Kovaleski // Rev. Sci. Instrum. - 2012. - V. 83, № 2. - P. 025106.
15. Scott, J. F. Applications of Modern Ferroelectrics /J. F. Scott // Science.- 2007. - V. 315, № 5814. - P. 954-959.
16. Riege, H. Features and technology of ferroelectric electron emission / H. Riege [et al] // Journal of Applied Physics. - 1998. - V. 84, № 3. - P. 1602-1617.
17. Geuther, Jeffrey A. Enhanced neutron production from pyroelectric fusion / Jeffrey A. Geuther, Yaron Danon // Applied Physics Letters. - 2007. - V. 90, № 17. - P.174103
18. Kukhtarev, N.V. Crystal accelerators: generation of focused electron beams, X-rays and neutrons / N.V Kukhtarev [et al] // MC2 Photorefractive Effects, Photosensitivity, Fiber Gratings, Photonic Materials and More (PR). - 2007.
19. Tornow, W. Evidence for neutron production in deuterium gas with a pyroelectric crystal without tip / W. Tornow [et al] // J. Appl. Phys. - 2008. - V. 104, № 3. - P.034905.
20. Zhang, X. Optical trapping and manipulation of metallic micro/nanoparticles via photorefractive crystals / X.Zhang [et al] // Optics Express. - 2009. - V. 17, №. 12. - P. 9981.
21. Kukhtarev, N. Optical trapping of nano-(micro)particles by gradient and photorefractive forces / N. Kukhtarev [et al] // Journal of Holography and Speckle.- 2009. - V. 5, № 3. - P. 268-274.

22. Esseling, M. Two-dimensional dielectrophoretic particle trapping in a hybrid crystal/PDMS-system / M. Esseling [et al] // *Optics Express*. - 2010. - V. 18, № 16. - P. 17404-17411.
23. Esseling, M. Highly reduced iron-doped lithium niobate for optoelectronic tweezers / M. Esseling [et al] // *Appl. Phys. B*. - 2013. - V. 113, № 2. - P. 191-197.
24. Jubera, M. Particle trapping and structuring on the surface of LiNbO₃:Fe optical waveguides using photovoltaic fields / M. Jubera [et al.] // *Optics Letters*. - 2014. - V. 39, № 3. - P.649-652.
25. Петров, М.П. Фоторефрактивные кристаллы в когерентной оптике / М.П. Петров, С.И. Степанов, А.В. Хоменко. - СПб.: Наука, 1992. - 320 с.
26. Шандаров, С.М. Фоторефрактивные эффекты в электрооптических кристаллах: монография / С.М. Шандаров, В.М. Шандаров, А.Е. Мандель, Н.И. Буримов. - Томск: ТУСУР, 2007. - 242 с.
27. Стурман, Б.И. Фотогальванический эффект в средах без центра симметрии и родственные явления / Б.И. Стурман, В.М. Фридкин. - М.: Наука, 1992.
28. Volk, T. Lithium Niobate: Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching / T. Volk, M. Wöhlecke. - Berlin-Heidelberg: Springer-Verlag, 2008. - 247 p.
29. Peithmann, K. Photorefractive properties of LiNbO₃ crystals doped by copper diffusion / K. Peithmann [et al.] // *Phys. Rev. B*. - 2001. - V. 61, № 7. - P. 4615-4620.
30. Буримов, Н.И. Структура упругих и электрических полей, возникающих вблизи границы кристалла LiNbO₃ при фотогальваническом механизме записи фоторефрактивных решеток/ Н.И. Буримов, С.М. Шандаров // *Физика твердого тела*. - 2006. - Т. 48, N 3. - С. 491-496.
31. Барфут, Дж. Введение в физику сегнетоэлектрических явлений / Дж. Барфут. - Москва: Изд-во «Мир», 1970. - 352 с.
32. Лайнс, М. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы / М. Лайнс, А. Гласс // пер. с англ. под ред. В.В. Леманова и Г.А. Смоленского. - Москва: «Изд-во «Мир», 1981. -736 с.

33. Гриднев, С.А. Электрические кристаллы / С.А. Гриднев // Соросовский образовательный журнал. - 1996. - № 7. - С.99-104.
34. Пасынков В.В. Материалы электронной техники, 2-е изд. / В.В. Пасынков, В.С. Сорокин. - М.: ВШ., 1986. - 367 с.
35. Блистанов, А. А. Кристаллы квантовой и нелинейной оптики: учебное пособие для вузов / А. А. Блистанов. - М.: МИСИС, 2000. - 432 с.
36. Кузьминов, Ю. С. Ниобат и танталат лития – материалы для нелинейной оптики / Ю. С. Кузьминов. - М.: Наука, 1975. - 224 с
37. Сиротин, Ю.И. Основы кристаллофизики / Ю.И. Сиротин, М.П. Шаскольская. - М.: Наука, 1979. - 640 с.
38. Най, Дж. Физические свойства кристаллов / Дж. Най. - М.: Мир, 1967. - 386 с.
39. Rosenblum, B. Thermally stimulated field emission from pyroelectric LiNbO_3 / B. Rosenblum, P. Bräunlich, and J. P. Carrico // Appl. Phys. Lett. - 1974. - V. 25. - P. 17-19.
40. Bräunlich, Peter Fritz .Electron and x-ray generator, United States Patent No. 3,840, 748 (1974)
41. Brownridge, J. D. Pyroelectric X-ray generator / J. D. Brownridge // Nature (London). - 1992. - V. 358. - P. 287-288.
42. X-Ray Generation: Pyroelectric Crystal [Электронный ресурс]. <http://www.amptek.com>. Режим доступа: свободный (дата обращения: 10.05.2016)
43. Arkin, William T. Trends in Lasers and Electro-Optics Research, chapter 2 Electron and Positive Ion Beams and X-rays Produced by Heated and Cooled Pyroelectric Crystals such as LiNbO_3 and LiTaO_3 in Dilute Gases: Phenomenology and Applications (J.D. Brownridge and S.M. Shafroth.) / Arkin, William T. - Nova Science Publishers, Editor: William T. Arkin, 2006. - P. 59–95.
44. Нагайченко, В.И. Рентгеновское излучение пироэлектрического генератора / В.И. Нагайченко [и др.] // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. - 2007. - № 3. - С. 81-89.

45. Geuther, J. Electron acceleration for X-ray production using paired pyroelectric crystals / J. Geuther [et al.] // Proc. of 6 Intern. Meeting on Nucl. Applications of Accel. Technology, San Diego. - 2003, AccApp'03. - P. 124.
46. Geuther, Jeffrey A. Electron and positive ion acceleration with pyroelectric crystals / Jeffrey A. Geuther [et al.] // J. Appl. Phys. - 2005. - V. 97. - P. 074109.
47. Geuther, Jeffrey A. High-energy x-ray production with pyroelectric crystals / Jeffrey A. Geuther [et al.] // J. Appl. Phys. - 2005. - V. 97. - P.104916.
48. Kukhtarev, N.V. Combined optical and electrical effects in ferroelectric crystal for high laser intensities / N.V. Kukhtarev [et al.] // Proc. SPIE 7420, Photonic Fiber and Crystal Devices: Advances in Materials and Innovations in Device Applications III. - 2009. - V. 7420. - P. 74200L.
49. Brownridge, J. D. Investigations of pyroelectric generation of x-rays / J. D. Brownridge, Sol Raboy // J. Appl. Phys. - 1999. - V. 86, № 11. - P.640.
50. Ghaderi, R. // Dynamics of pyroelectric accelerators/ R. Ghaderi, F. Abbasi Davani // Applied Physics Letters. - 2015. - V. 106. - P. 042906.
51. Buse K. Light-induced charge transport processes in photorefractive crystalsII:Materials //Appl. Phys. B. - 1997. - V. 64. - № 4. - P. 391-407.
52. Muñoz-Martínez, Juan F. Efficient photo-induced dielectrophoretic particle trapping on Fe:LiNbO₃ for arbitrary two dimensional patterning / Juan F. Muñoz-Martínez [et al.] // Optical Materials Express. - 2015. - V. 5, № 5. - P. 1137-1146.
53. Matarrubia, J. Optimization of particle trapping and patterning via photovoltaic tweezers: role of light modulation and particle size / J. Matarrubia [et al.] // J. Phys. D: Appl. Phys. - 2014. -V. 47, № 26. - P. 26510.
54. Burgos, H. Role of particle anisotropy and deposition method on the patterning of nano-objects by the photovoltaic effect in LiNbO₃/ H. Burgos [et al.] // Optical Materials. - 2013. - V. 35, № 9. - P. 1700-1705.
55. Villarroel, J. Photovoltaic versus optical tweezers / J. Villarroel [et al.] // Opt Express. - 2011. - V.19, № 24. - P. 24320-30.

56. Carrascosa, M. LiNbO₃: A photovoltaic substrate for massive parallel manipulation and patterning of nano-objects / M. Carrascosa [et al.] // *Appl. Phys. Rev.* - 2015. - V. 2, № 4. - P. 040605.
57. Стурман, Б.И. Фотогальванический эффект – новый механизм нелинейного взаимодействия волн в электрооптических кристаллах / Б.И. Стурман // *Квантовая электрон.* - 1980. - Т.7, № 3. - С. 483-488.
58. Белиничер, В.И. Фотогальванический эффект в средах без центра симметрии / В.И. Белиничер, Б.И. Стурман // *УФН.* - 1980. - Т.130, № 3. - С.415-458.
59. Festel, H.G. Investigations of the photovoltaic tensor in doped LiNbO₃:Fe / H.G. Festel [et al] // *Phys. Stat. Sol.(b).* - 1982. -V. 113, № 1. - P.157-164.
60. Фридкин, В.М. Аномальный фотовольтаический эффект в LiNbO₃:Fe в поляризованном свете / В.М. Фридкин, Р.М. Магомадов // *Письма в ЖТЭФ.* - 1979. - Т. 30, № 11. - С. 723-726.
61. Хатьков, Н.Д. Компоненты фотогальванического тензора кристалла LiNbO₃:Fe / Н.Д. Хатьков, С.М. Шандаров // *Автоматрия.* - 1987. - № 6. - С. 103.
62. Kukhtarev, N.V. Pyroelectric and photogalvanic crystal accelerators / N.V. Kukhtarev [et al.] // *J. Appl. Phys.* - 2009. - V. 106. - P. 014111.
63. Reagan, M. Peculiarities of ferroelectric emission from photorefractive z-cut LiNbO₃ /M. Reagan [et al] // *Frontiers in Optics, OSA Technical Digest (CD) (Optical Society of America).* - 2003, paper MT65.
64. Kukhtarev, N. Generation of focused electron beam by pyroelectric and photogalvanic crystals / N. Kukhtarev [et al.] // *J. Appl. Phys.* - 2004. - V. 96, № 11. - P. 6794.
65. Abo, S. Electron emission from pyroelectric crystal excited using high power infra-red laser light and its x-ray source application/ S. Abo [et al] // *Technical Digest, 2014 27th International Vacuum Nanoelectronics Conference, 6-10 July, 2014 Engelberg, Switzerland.* - 2014. - P. 106-107.

66. Kisa, T. Electron emission from LiNbO₃ crystal excited by ultraviolet laser / T. Kisa [et al] // J. Vac. Sci. Technol. - 2010. - V. 28. - P. C2B27-C2B29.
67. Kaga, E. Electron emission from LiTaO₃ and LiNbO₃ crystals excited by Nd:YLF laser light and its X-ray source application / E. Kaga [et al.] // Ext. Abst. of the 24th Intern. Vacuum Nanoelectronics Conference. - 2011. - P. 136-137.
68. Bourim, E.M. Investigation of pyroelectric electron emission from monodomain lithium niobate single crystals / E.M. Bourim [et al.] // Physica. B Condensed matter. - 2006. - V. 383, № 2. - P. 171-182.
69. Kitamura, Kenji. Large pyroelectric effect in Fe-doped lithium niobate induced by a high-power short-pulse laser / Kenji Kitamura [et al] // Applied Physics Letters. - 2010. - V. 97, № 8. - P.082903.
70. Bourim, E.M. Pyroelectric electron emission from -Z face polar surface of lithium niobate monodomain single crystal / E.M. Bourim [et al] // Journal of Electroceramics. - 2006. - V. 17, № 2. - P.479-485.
71. Naranjo, B. Observation of nuclear fusion driven by a pyroelectric crystal / B. Naranjo [et al.] // Nature (London). - 2005. - V. 434, № 7037. - P. 1115.
72. Geuther, J. Nuclear reactions induced by a pyroelectric accelerator / J. Geuther [et al.] // Phys. Rev. Lett. - 2006. - V. 96, № 5. - P. 054803.
73. Rosenman, G. Electron emission from ferroelectrics / G. Rosenman [et al.] // J. Appl. Phys. - 2000. - V. 88, № 11. - P.6109-6161.
74. Brownridge, James D. Pressure dependence of energetic focused electron beams arising from heated or cooled LiNbO₃ pyroelectric crystals / James D. Brownridge [et al.] // Applied Physics Letters. - 2003. - V. 83, № 7. - P. 1477.
75. Brownridge, J.D. Observation of multiple nearly monoenergetic electron production by heated pyroelectric crystals in ambient gas / J. D. Brownridge [et al.] // Applied Physics Letters. - 2001. - V. 78, № 8. - P.1158.
76. Fullem, T. Z. Therapeutic dose from a pyroelectric electron accelerator / T. Z. Fullem [et al.] // Radiat. Res. - 2009. - V. 172, № 5. - P. 643-647.

77. Рез, И.С. Диэлектрики. Основные свойства и применения в электронике / И.С. Рез, Ю.М. Поплавко. - М.: Радио и связь, 1989. - 288 с.
78. Струков, Б.А. Физические основы сегнетоэлектрических явлений в кристаллах / Б.А.Струков, А.П. Леванюк. - М.: Наука, 1983. - 240 с.
79. Сидоркин, А.С. Доменная структура в сегнетоэлектриках и родственных материалах / А.С. Сидоркин. - М.: ФИЗМАТЛИТ, 2000. - 240 с
80. Барфут, Дж. Полярные диэлектрики и их применения / Дж. Барфут, Дж. Тейлор ; пер. с англ. под ред. Л.А. Шувалова. - М.: Мир, 1981. - 526 с.
81. Яффе, Б. Пьезоэлектрическая керамика / Б. Яффе, У. Кук, Г. Яффе. - М.: Мир, 1974. - 288 с.
82. Рез, И.С. Современные тенденции в разработке и применениях сегнето- и пьезоэлектрико в// Актуальные проблемы сегнетоэлектрических фазовых переходов / И.С. Рез. - Рига: Латв.ун-т, 1983. - С. 53-79.
83. Кузьминов, Ю.С. Сегнетоэлектрические кристаллы для управления лазерным излучением / Ю.С. Кузьминов. - М.: Наука, 1982. - 400 с.
84. Буш, А. А. Пироэлектрический эффект и его применения : учеб. пособие / А. А. Буш. - Москва, Государственное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики (технический университет)», 2005. - 212 с
85. Сидоров, Н. В. Ниобат лития: дефекты, фоторефракция, колебательный спектр, поляритоны / Н. В. Сидоров, Т. Р. Волк, Б. Н. Маврин, В. Т. Калинин. - М.: Наука, 2003. - 255 с
86. Travish, G. Addressable flat-panel x-ray sources for medical, security, and industrial applications / G. Travish [et al.] // SPIE Proceedings, Advances in X-Ray/EUV Optics and Components VII. - 2012. - V. 8502. - P.85020L.
87. Ashkin, A. Trapping of atoms by resonance radiation pressure / A. Ashkin // Phys. Rev. Lett. - 1978. - V. 40, № 12. - P. 729-732.

88. Ashkin, A. Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles / A. Ashkin [et al.] // *Optics Letters*. - 1989. - V.11, № 5. - P. 288-290.
89. Noginova, N. Holographic-current study in laser and photorefractive crystals / N. Noginova [et al.] // *Journal of the Optical Society of America B*. - 1996. - V. 13, № 1. - P. 2622-2629.
90. Mansurova, S. S. Giant enhancement of low frequency non-steady-state photo-EMF signal in $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ crystal under external DC bias/ S.S. Mansurova [et al.] // *Optics Communication*. - 1998. - V. 152. - P. 207-214.
91. Kukhtarev, N.V. *Photorefractive Materials and Applications* / N.V. Kukhtarev, T. Kukhtareva, and P. Buchhave. - Academic, New York, 2000. - P. 1.
92. Buchhave, P. Relations between spontaneously occurring beams in bismuth silicon oxide with two frequency-detuned pump beams / P Buchhave [et al.] // *Optics letters*. - 1995. - V. 20, № 23. - P. 2363-2365.
93. Arlt, M. Moving interference patterns created using the angular Doppler-effect / M. Arlt [et al.] // *Opt. Express*. - 2002. - V. 10. - P. 844-852.
94. Kukhtarev, N.V. Smart photogalvanic running-grating interferometer / N.V. Kukhtarev [et al.] // *J. Appl. Phys.* - 2005. - V. 97. - P. 054301.
95. Blázquez-Castro, A. Tumour cell death induced by the bulk photovoltaic effect of $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ under visible light irradiation / A. Blázquez-Castro [et al.] // *Photochem Photobiol Sci.* - 2011. - V.10, № 6. - P.956-963.
96. Мамбетова, К.М. Оптические и фоторефрактивные свойства структур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$, сформированных высокотемпературной диффузией меди / К.М. Мамбетова, А. И. Татьянников // Научная сессия ТУСУР-2016: Материалы докладов Всероссийской научно-технической конференции студентов, аспирантов и молодых ученых, Томск, 25–27 мая 2016 г. - Томск: В-Спектр, 2015: в 6 частях. - Ч. 2. - С. 271-274.
97. Orlikov, L.N. The combination methodic of diffusion and implantation technologies for creating optic wave-guided layers in lithium niobate / L.N. Orlikov,

N.L. Orlikov, S.I. Arestov, K.M. Mambetova, S.M. Shandarov. //В сборнике: IOP Conference Series: Materials Science and Engineering Сер. «International Scientific Conference on «Radiation-Thermal Effects and Processes in Inorganic Materials», RTER 2014». - 2015. - С. 012043.

98. Мамбетова, К.М. Исследование формирования сильных электрических полей в легированных медью кристаллах ниобата лития /К.М. Мамбетова, С.М. Шандаров // Известия Самарского научного центра Российской академии наук. - 2013. - Т. 15, № 6-1. - С. 113-116.

99. Orlikov, L.N. Formation of wave-guide layers in lithium niobate with the use of copper implantation and diffusion// L.N. Orlikov, S.I. Arestov, K.M. Mambetova, S.M. Shandarov //Известия высших учебных заведений. Физика. - 2014. - Т. 57, № 10-3. - С. 54-57.

100. Мамбетова, К.М. Динамика формирования пропускающих голограмм в кристаллах ниобата лития, легированных медью методом высокотемпературной диффузии / К.М. Мамбетова [и др.] // Известия высших учебных заведений. Радиофизика.-2014.-Т.LVII.-№ 8–9.-С. 675-682.

101. Мамбетова, К.М. Исследования динамики формирования поля пространственного заряда пропускающих голограмм в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ / К.М. Мамбетова [и др.] // Научная сессия ТУСУР-2013: Материалы докладов Всероссийской научно-технической конференции студентов, аспирантов и молодых ученых. - Томск: В-Спектр, 2013. - Ч. 2. - С. 27-30.

102. Мамбетова, К.М. Фоторефрактивные эффекты в кристаллах ниобата лития, легированных медью методом высокотемпературной диффузии / К.М. Мамбетова, С.М. Шандаров // Материалы Всероссийской с международным участием научной конференции «Полифункциональные химические материалы и технологии» (Томск, 21-23 ноября, 2013). - Т. 1. - С. 192-193.

103. Калинин, С.Б. Способ изготовления интегральных световодов / С.Б. Калинин, В.М. Шандаров, С.М. Шандаров // Описание изобретения к авторскому свидетельству СССР N784541. - 1980.

104. Уханов Ю.И. Оптические свойства полупроводников : моногр. - М.: Главная редакция физико-математической литературы издательства «Наука», 1977. - 368 с.
105. Edwards, G.J. A temperature-dependent dispersion equation for congruently grown lithium niobate / G.J. Edwards, M. Lawrence // Opt. Quant. Electron. - 1984. - V. 16, № 4. - P. 373-375.
106. Зилинг, К.К. Связь профилей показателя преломления с кинетикой диффузии титана в планарных волноводах на LiNbO_3 // К.К. Зилинг [и др.] // Автометрия. - 1978. - № 5. - С. 103-108.
107. Hukriede, J. Copper diffusion into lithium niobate / J. Hukriede [et al.] // Phys. stat. sol. (a). - 1999. - V. 172. - P. R3.
108. Krätzig, E. Light induced charge transport in doped LiNbO_3 and LiTaO_3 / E. Krätzig, R. Orlovski // Ferroelectrics. - 1980. - V. 27. - P. 241-244.
109. Buse, K. Origin of thermal fixing in photorefractive lithium niobate crystals / K. Buse [et al.] // Phys. Rev. B. - 1997. - V. 56. - P. 1225-1235.
110. Башкиров, А. И. Введение в квантовую и оптическую электронику: Учебное пособие / А. И. Башкиров, С. М. Шандаров. - Томск: ТУСУР, 2012. - 98 с.
111. Дмитриев, В.Г. Прикладная нелинейная оптика / В.Г. Дмитриев, Л.В. Тарасов. - 2-е изд., перераб. и доп. - М.: ФИЗМАТЛИТ, 2004. - 512 с.
112. Лаврентьев, М.А. Методы теории функций комплексного переменного / М.А. Лаврентьев, Б.В. Шабат. - 4-е изд., перераб. и доп. - М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., 1973. - 749 с.
113. Абрамовиц, М. Справочник по специальным функциям с формулами, графиками и математическими таблицами / М. Абрамовиц, И. Стиган. - М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., 1979. - 832 с.
114. Болтакс, Б.И. Диффузия и точечные дефекты в полупроводниках / Б.И. Болтакс. - Л.: Наука, 1972. - 384 с.

115. Glass, A. M. High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO_3 / A. M. Glass [et al.] // *Applied Physics Letters*. - 1974. - V. 25, № 4. - P. 233-235.
116. Линник, Ю. В. Метод наименьших квадратов и основы математико-статистической теории обработки наблюдений / Ю. В. Линник. - 2-е изд. - М., 1962 (математическая теория). - 349 с.
117. García-Cabañes, A. Recent achievements on photovoltaic optoelectronic tweezers based on lithium niobate / A. García-Cabañes, A. Blázquez-Castro, L. Arizmendi, F. Agulló-López, M. Carrascosa // *Crystals*. - 2018. - V. 8, № 2. - P. 65.
118. Blázquez-Castro, A. Biological applications of ferroelectric materials / A. Blázquez-Castro, A. García-Cabañes, M. Carrascosa // *Appl. Phys. Rev.* - 2018. - V. 5, № 4. - P. 041101.
119. Мамбетова, К.М. Агрегирование диэлектрических наночастиц на поверхности легированных медью кристаллов ниобата лития при лазерном воздействии / К.М. Мамбетова, А.И. Татьянников, С.М. Шандаров // *Актуальные проблемы электронного приборостроения (АПЭП 2018): Труды XIV Международной научно-технической конференции*. - Новосибирск: НГТУ, 2018. - Т. 8. - С. 36-40.
120. Мамбетова, К.М. Агрегирование диэлектрических наночастиц на X-срезе кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ электрическими полями фоторефрактивных голограмм / К.М. Мамбетова, С.М. Шандаров, А.И. Татьянников, С.В. Смирнов // *Известия вузов. Физика*. - 2019. - Т. 62, № 4. - С. 89-93.
121. Jermann, F. Light-induced charge transport in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ at high light intensities / F. Jermann, J. Otten // *J. Opt. Soc. Am. B*. - 1993. - V. 10, № 11. - P. 2085-2092.
122. Uchida, N. Calculation of diffraction efficiency in hologram gratings attenuated along the direction perpendicular to the grating vector / N. Uchida // *J. Opt. Soc. Am.* - 1973. - V. 63, № 3. - P. 280-287.

123. Мамбетова, К.М. Формирование динамических фоторефрактивных решеток в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ с поверхностным легированием / К.М. Мамбетова [и др.] // Оптика и спектроскопия. - 2019. - Т. 126, № 6. - С. 858-863.

124. Бацанов, С.С. Диэлектрические проницаемости и заряды атомов в окислах редкоземельных элементов / С.С. Бацанов, Дулепов Е.В. // Физика твердого тела. - 1964. - Т. 7, № 4. - С. 1239-1241.

125. Кичанов, С.Е. Исследование особенностей структуры оксидных нанокластеров церия и титана в силикатном стекле методом малоуглового рассеяния нейтронов / С.Е. Кичанов [и др.] // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. - 2014. - № 2. - С. 5-10.

126. Томилин, В. И. Физическое материаловедение : в 2 ч. Ч. 1. Пассивные диэлектрики : учебное пособие / В. И. Томилин, Н. П. Томилина, В. А. Бахтина. - Красноярск : Сиб. федер. ун-т, 2012. - 280 с.

127. Воронкова, Е.М. Оптические материалы для инфракрасной техники / Е.М. Воронкова, Б.Н. Гречушников, Г.И. Дистлер, И.И. Петров. - М.: Наука, 1965. - 335 с.

128. Самсонов, Г.В. Физическое материаловедение карбидов / Г.В. Самсонов, Г.Ш. Упадхая, В.С. Нешпор. - Киев: Наукова думка, 1974. - 455 с.

129. Кржижановский, Р. Е. Теплофизические свойства неметаллических материалов (карбиды) : справочная книга / Р. Е. Кржижановский, З. Ю. Штерн. - Л. : Энергия, 1977. - 119 с.

130. Зверев, Г.М. Лазеры на алюмоиттриевом гранате с неодимом / Г.М. Зверев, Ю.Д. Голяев, Е.А. Шалаев, А.А. Шокин. - М.: Радио и связь, 1985. - 144 с.

131. Pohl, H., Dielectrophoresis: The behavior of neutral matter in nonuniform electric fields / H. Pohl. - Cambridge University Press, Cambridge, 1978. - 590 p.

132. Regtmeier, J. Electrodeless dielectrophoresis for bioanalysis: theory, devices and applications / J. Regtmeier [et al.] // *Electrophoresis*. - 2011. - V. 32, № 17. - P. 2253-2273.

133. Arregui, C. Optoelectronic tweezers under arbitrary illumination patterns: theoretical simulations and comparison to experiment / C. Arregui [et al.] // *Opt. Express*. 2014. - V. 22, № 23. - P. 29099-29110.

134. Muñoz-Martínez, J.F. Efficient photo-induced dielectroforetic particle trapping on Fe:LiNbO₃ for arbitrary two dimensional patterning / J.F. Muñoz-Martínez [et al.] // *Opt. Mat. Express*. 2015. - V. 5, № 5. - P. 1137-1146.

135. Орликов, Л.Н. Генерация рентгеновского излучения при термическом воздействии на ниобат лития / Л.Н. Орликов, К.М. Мамбетова, А.О. Злобин, С.М. Шандаров // *Известия высших учебных заведений. Физика*. - 2018. - Т. 61, № 9/2. - С. 211-216.

136. Mambetova, K.M. X-Ray Generation Based On Lithium Niobate Crystal Heating / K.M. Mambetova [et al.] // 6th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE2018, September 16-22, 2018 in Tomsk, Russia.): 18th International Conference on Radiation Physics and Chemistry of Condensed Matter Abstracts. - Tomsk: TPU Publishing House, 2018. - 66 pp.

137. Орликов, Л.Н. Генерация волн ионизации при пироэфекте на ниобате лития / Л.Н. Орликов, С.М. Шандаров, К.М. Мамбетова // *Материалы XIII Международной научно-практической конференции «Электронные средства и системы управления»*. - 2017. - № 1-1. - С. 249-252.

138. Мамбетова, К.М. Динамика пироэлектрической генерации электронного пучка монокристаллическими образцами ниобата лития / К.М. Мамбетова [и др.] // VI Международная конференция Фотоника и информационная оптика, 1-3 февраля 2017 года, Сборник научных трудов. - Москва, НИЯУ МИФИ 2017. - С. 38-39.

139. Orlikov, L.N. Generation of ionizing radiation from lithium niobate crystals / L.N. Orlikov, N.L. Orlikov, S.I. Arestov, K.M. Mambetova, S.M. Shandarov // *IOP*

Conference Series: Materials Science and Engineering. - 2017. - V. 168, № 1. - P. 012074.

140. Орликов, Л.Н. Источник электронов на основе ниобата лития, легированного железом / Л.Н. Орликов, К.М. Мамбетова, С.И. Арестов, С.М. Шандаров // Известия высших учебных заведений. Физика. - 2016. - Т. 59, № 9-3. - С. 123-126.

141. Блистанов, А. А. Акустические кристаллы. Справочник / А.А. Блистанов, В. С. Бондаренко, Н. В. Переломова и др.; под ред. М. П. Шаскольской. - М. : Наука, 1982. - 632 с.

142. Orlikov, L.N. Pulse source of electrons based on the pyroeffect / L.N. Orlikov, K.M. Mambetova, S.I. Arestov, S.M. Shandarov, N.I. Burimov, B.I. Avdochenko, A.A. Elchaninov // PROCEEDINGS 2020 7th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE) Tomsk, Russia, September 14 – 26, 2020. - P. 408-412.

143. Mambetova, K.M. Kinetics of pyroelectric generation of pulse electron flows by lithium niobate crystals / K.M. Mambetova, L.N. Orlikov, S.I. Arestov, S.M. Shandarov, N.I. Burimov, B.I. Avdochenko, A.A. Elchaninov // 7th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE-2020 online) September 14–25, 2020 Tomsk, Russia: Abstracts. - Tomsk: Publishing House of IAO SB RAS, 2020. - P. 427.

144. Lang, Sidney B. Pyroelectricity: from ancient curiosity to modern imaging tool / Sidney B. Lang // Physics today. - 2005. - V. 58, № 8. - P. 31-36.

145. Popescu, S. T. Interferometric measurement of the pyroelectric coefficient in lithium niobate / S. T. Popescu, A. Petris, V. I. Vlad // Journal of Applied Physics. - 2013. - V. 113. - P. 043101.

146. Weis, R. S. Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure / R. S. Weis, T. K. Gaylord // Applied Physics A. - 1985. - V. 37. - P.191-203.

147. Сканава, Г.И. Физика диэлектриков (область сильных полей) / Г.И. Сканава. - М.: Физматгиз, 1958. - 907 с.

148. Андрианов, В.А. Пространственная и временная неоднородность электронного потока в пирозлектрических рентгеновских источниках / В.А. Андрианов, А.А. Буш, А.Л. Ерзинкян, К.Е. Каменцев // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. - 2017. - № 7. - С. 25–31.

Приложение А. Акты внедрения

ООО «Кристалл Т»
+7 (3822) 488-599
office1@crystal.t.ru
www.crystal.t.ru

Исх. № 13-21 от 02 марта 2021 г.

**Акт
об использовании результатов диссертационной работы**

Настоящим актом подтверждается, что результаты научных исследований по созданию микроструктур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ диффузионным легированием ионами меди из металлических пленок, полученные в диссертационной работе сотрудника Томского государственного университета систем управления и радиоэлектроники Мамбетовой Ксении Мустафиевны «Генерация электронных пучков и агрегирование микро- и наночастиц в сильных электрических полях, формируемых на поверхности кристаллов LiNbO_3 и микроструктур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ при термическом и лазерном воздействии», представляемой на соискание ученой степени кандидата технических наук, использовались в ООО «Кристалл Т» при выполнении работ по созданию микроструктур $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ методом высокотемпературной диффузии из металлических пленок.

Директор

Н.И. Краковская



634055, Россия, г. Томск,
пр. Академический, 8/8

ИНН 7017217830

ОГРН 1087017020782

Министерство науки и высшего образования Российской Федерации
 Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего
 образования «Томский государственный университет систем управления и
 радиоэлектроники» (ТУСУР)



УТВЕРЖДАЮ
 Проректор по учебной работе
 кандидат технических наук, доцент
 _____ П. В. Сенченко

« 21 » января 2021 г.

СПРАВКА О ВНЕДРЕНИИ

результатов диссертационной работы Мамбетовой Ксении Мустафиевны в учебный
 процесс кафедры Электронных приборов (каф. ЭП)

Выдана для предоставления в диссертационный Совет, свидетельствующая о том, что в учебный процесс на кафедре ЭП ТУСУР (г. Томск) внедрены результаты научно-исследовательской деятельности в виде курсового и дипломного проектирования для студентов, обучающихся по направлению "Электроника и наноэлектроника", профиль "Квантовая и оптическая электроника" и "Фотоника и оптоинформатика", профиль "Фотоника нелинейных, волноводных и периодических структур". Также результаты используются в процессе прохождения производственной, преддипломной и научно-исследовательской практик студентами кафедры Электронных приборов, при проведении научно-исследовательских работ, в рамках группового проектного обучения.

Зав. кафедрой ЭП, доктор физ.-мат. наук, проф.,
 _____ Н.И. Буримов

« 21 » января 2021 г.