

НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЦЕНТР
«КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ»

На правах рукописи



Пиляк Федор Сергеевич

**Динамика пьезофотовольтаического эффекта
в кристаллах ниобата лития, легированных железом**

Специальность 1.3.20. Кристаллография, физика кристаллов

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва – 2026

Работа выполнена в Институте кристаллографии им. А.В. Шубникова Курчатовского комплекса кристаллографии и фотоники Национального исследовательского центра «Курчатовский институт» (НИЦ «Курчатовский институт»), г. Москва.

Научный руководитель: **Ковальчук Михаил Валентинович**
доктор физико-математических наук, профессор,
член-корреспондент РАН,
президент НИЦ «Курчатовский институт».

Официальные оппоненты: **Менушенков Алексей Павлович**
доктор физико-математических наук, профессор
кафедры физики твердого тела и наносистем
Института лазерных и плазменных технологий
Национального исследовательского ядерного
университета «МИФИ», г. Москва;

Овчинникова Елена Николаевна
доктор физико-математических наук, профессор
кафедры физики твердого тела физического
факультета Московского государственного
университета им. М.В. Ломоносова, г. Москва.

Ведущая организация: Федеральное государственное автономное
образовательное учреждение высшего
образования «Национальный исследовательский
технологический университет «МИСИС»,
г. Москва.

Защита состоится 24 июня 2026 г., начало в 16:00, на заседании диссертационного совета 02.1.003.07 на базе НИЦ «Курчатовский институт» по адресу: 123182, г. Москва, пл. Академика Курчатова д. 1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЦ «Курчатовский институт» и на сайте <http://www.nrcki.ru/>

Автореферат разослан «__» _____ 2026 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета 02.1.003.07
кандидат физико-математических наук



Фролов К.В.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

Деформации могут использоваться в качестве инструмента для управления функциональными свойствами кристаллических материалов. Данный подход лежит в основе направления стрейнтроники, в рамках которого осуществляется разработка нового поколения устройств информационных, сенсорных и энергосберегающих технологий [1].

В настоящее время активно разрабатываются и апробируются различные способы создания деформаций, основанные на воздействии магнитного [2] и внешних электрических полей [3]. Лазерное излучение как инструмент формирования деформаций представляется одним из наиболее перспективных, поскольку такой способ является бесконтактным и позволяет управлять параметрами создаваемых деформаций (время формирования, амплитуда, степень локализации, топология). Помимо этого, воздействие лазерного излучения способно активировать комплекс деформационных процессов различной природы, отличающихся эффективностью и временем протекания. Отдельный интерес представляет возможность формирования деформаций за счет комбинации пьезоэлектрического и объемного фотовольтаического эффектов за счет высокой напряженности индуцируемых полей [4].

Одним из наиболее перспективных объектов для исследования фотоиндуцированных деформационных процессов является кристалл ниобат лития, в котором наблюдаются сильный пьезоэлектрический и фотовольтаический эффекты, последний из которых проявляется ярче при наличии в кристалле примеси железа.

Существует ряд работ, в рамках которых рентгенодифракционными методами исследовались фотоиндуцированные деформационные процессы в ниобате лития. В работах [5, 6] по изменению рентгеновских дифракционных картин при воздействии лазерного излучения наблюдалась деформация кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ величиной до $\sim 3 \times 10^{-4}$ со временем формирования в несколько десятков минут. Имеющиеся на тот момент методические и инструментальные ограничения не позволили провести детальный анализ механизмов формирования деформаций. В [7] исследовалось

пространственное распределение фотоиндуцированных деформаций с минутным временным разрешением в том же кристалле с помощью метода рентгеновской топографии, реализованного на синхротронном источнике рентгеновского излучения.

В работе [8] была зарегистрирована быстрая деформация в монокристалле LiNbO_3 при воздействии высокоинтенсивного фемтосекундного лазерного импульса. К сожалению, воздействие лазерных импульсов высоких энергий способно приводить к возникновению дополнительных нелинейных процессов, вклад которых сложно разделить между собой.

В связи с этим требуется разработка комплексного подхода, основанного на времяразрешающем методе с высокой чувствительностью к изменениям реальной структуры кристаллических материалов, который позволит разделить вклады отдельных фотоиндуцированных эффектов.

Подобная задача может быть решена за счет применения методов рентгеновской дифрактометрии в экспериментальной схеме накачка–зондирование, при которой в качестве импульса накачки используется лазерное излучение с относительно малой энергией, а чувствительность и временное разрешение достигается посредством применения специализированных схем накопления дифрагированного сигнала и систем синхронизации. Применение дополнительных комплементарных методик для регистрации параметров, характеризующих проявление различных фотоиндуцированных явлений в кристалле, позволит оценить их вклады и упростить интерпретацию результатов рентгенодифракционного эксперимента.

Цель работы

Разработка комплексного аппаратно-методического подхода для изучения обратимых фотоиндуцированных явлений в кристаллических материалах, основанного на методах рентгеновской дифрактометрии, и его применение для исследования фотоиндуцированных процессов в кристалле ниобата лития, в частности обусловленных комбинацией объемного фотовольтаического и обратного пьезоэлектрического эффектов.

В соответствии с поставленной целью **в работе решались следующие задачи:**

1. Определение комплекса фотоиндуцированных явлений, характерных для кристалла ниобата лития в условиях воздействия лазерного излучения относительно малой интенсивности, а также оценка временных параметров каждого из них с целью выделения вкладов в амплитуду и скорость создаваемых ими деформационных процессов.

2. Разработка комплексного подхода, основанного на методах рентгеновской дифрактометрии, для регистрации динамики фотоиндуцированных процессов в широком диапазоне времен, реализуемого в схеме «оптическая накачка – рентгеновское зондирование» на лабораторном и синхротронном источниках рентгеновского излучения.

3. Проведение серии экспериментальных работ по исследованию динамики фотоиндуцированных процессов в кристаллах ниобата лития и ниобата лития с примесью железа на лабораторном источнике рентгеновского излучения, а также выявление процессов, обусловленных суперпозицией объемного фотовольтаического и обратного пьезоэлектрического эффектов.

4. Исследование быстрых фотоиндуцированных процессов в кристаллах ниобата лития и ниобата лития с примесью железа посредством регистрации динамики рентгенодифракционных картин в экспериментальной схеме «оптическая накачка – рентгеновское зондирование» с временным разрешением в 1 нс.

Научная новизна

1. Предложена комплексная методика исследования фотоиндуцированных процессов в сегнетоэлектрических кристаллах, позволяющая разделять вклады отдельных явлений по параметрам формируемых ими деформаций, основанная на применении методов рентгеновской дифрактометрии, комплементарных методов и численных оценок.

2. Реализован новый класс времяразрешающих рентгенодифракционных экспериментов в схеме «оптическая накачка –

рентгеновское зондирование» на лабораторном дифрактометре, позволяющий регистрировать временные развертки рентгенодифракционных картин в условиях воздействия лазерного излучения для исследования повторяемых фотоиндуцированных процессов.

3. Впервые методами рентгеновской дифрактометрии выявлены различные временные стадии протекания фотоиндуцированных процессов в кристалле ниобата лития с примесью железа за счет регистрации процесса формирования деформаций кристалла при воздействии лазерного излучения, разделены вклады пьезофотовольтаического и пироэлектрического эффектов, а также теплового расширения по амплитудам деформаций и временам их формирования.

4. Впервые в ниобате лития с примесью железа зарегистрировано задержанное во времени изменение рентгенодифракционных параметров, проявляющееся в обратимом смещении центра масс кривой дифракционного отражения и падении интегральной интенсивности, наблюдаемое в течение ~ 35 нс после воздействия лазерного импульса. Показано, что наблюдаемая динамика обусловлена процессом формирования и последующего распада двойного электрического слоя, вызванным направленной миграцией фотоэлектронов вследствие объемного фотовольтаического эффекта.

Практическая значимость

Комплексный подход для *in-situ* и *in-operando* контроля функциональных кристаллических материалов в условиях воздействия лазерного излучения для их последующего применения в лазерной физике, фотонике и микроэлектронике. Разработанный комплексный подход представляет собой гибкий инструмент, который может применяться на лабораторных источниках рентгеновского излучения в качестве доступного способа проведения экспресс-контроля функциональных кристаллических материалов, а также на синхротронных источниках для реализации углубленных исследований с большим временным и пространственным разрешением.

Бесконтактный способ формирования и *in-situ* рентгенодифракционной диагностики быстропротекающих деформационных процессов, представляющий интерес с точки зрения фотовольтаики и стрейнтроники.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Экспериментальное обнаружение в кристалле ниобата лития с примесью железа пьезофотовольтаического эффекта – комбинации объемного фотовольтаического и обратного пьезоэлектрического эффектов – и его идентификация за счет сепарации от иных фотоиндуцированных процессов по параметрам формируемых ими деформаций (амплитудам и временам формирования), проведенная исходя из динамики изменения рентгенодифракционных картин и численных оценок.

2. Комплексная рентгенодифракционная методика исследования функциональных кристаллических материалов в условиях воздействия лазерного излучения для изучения обратимых фотоиндуцированных процессов.

3. Задержанный во времени эффект в кристаллах ниобата лития и ниобата лития с примесью железа, проявляющийся в изменении положения центра масс и падении интегральной интенсивности кривой дифракционного отражения, зарегистрированный в схеме «оптическая накачка – рентгеновское зондирование» при воздействии наносекундного лазерного импульса с временным разрешением в 1 нс на синхротронном источнике.

4. Механизм формирования и распада двойного электрического слоя в монокристалле ниобата лития, вызванный направленной миграцией фотоэлектронов вследствие объемного фотовольтаического эффекта.

Личный вклад автора

В основу диссертационной работы легли результаты исследований, проведенных автором в 2018-2025 годах в Институте Кристаллографии им. А.В. Шубникова ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН (в настоящий момент Курчатовский комплекс кристаллографии и фотоники НИЦ «Курчатовский институт»).

Личный вклад автора включает подбор экспериментальных методик и проработку стратегии исследования. Разработка и реализация комплексного аппаратно-методического подхода, а также обработка и анализ полученных с его помощью результатов проводилась автором лично. Реализация подхода на синхротронном источнике с последующей обработкой и интерпретацией полученных результатов экспериментов проводилась автором в тесном взаимодействии с участниками научной группы и соавторами публикаций. Подготовка результатов исследований к публикации проводилась автором лично при активном участии соавторов работ.

Достоверность полученных результатов

Достоверность представленных в работе результатов подтверждается использованием современного экспериментального оборудования и программного обеспечения, применением ряда комплементарных методик, а также наличием публикаций в рецензируемых научных изданиях и докладами на различных национальных и международных конференциях.

Апробация результатов работы

Материалы диссертационной работы докладывались более чем на 17 международных и национальных конференциях, в том числе на VII Международной летней школе для молодых ученых RACIRI-2019, молодежном конкурсе научных работ ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН в 2021 г., Девятой международной конференции «Кристаллофизика и деформационное поведение перспективных материалов» в 2021 г., IX Всероссийской научной молодежной школе-конференции «Химия, физика, биология: пути интеграции» в 2022 г., а также международном симпозиуме «XIV International Symposium "Radiation from Relativistic Electrons in Periodic Structures" & VIII International Conference "Electron, Positron, Neutron and X-ray Scattering under the External Influences» в 2023 г.

Публикации

В диссертацию включены результаты, представленные в 22 публикациях, из которых 5 статей в рецензируемых научных изданиях из списка Scopus, WoS и РИНЦ (см. [A1-A5] в списке авторских работ).

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения, выводов и списка цитируемой литературы. Объем диссертации составляет 123 страницы, включая 43 рисунок, 1 таблицу и список литературы из 156 наименований.

Содержание работы

Во **Введении** дана общая характеристика работы, обоснована актуальность темы, сформулирована цель и определены основные задачи исследования, кратко изложены научная новизна и практическая значимость работы.

Глава 1 представляет собой обзор литературы по теме исследования. В первом разделе рассмотрены методы рентгеновской дифрактометрии, реализуемые на лабораторных и синхротронных источниках рентгеновского излучения, а также рентгенодифракционные методики, применяемые для исследования кристаллических материалов. Отдельное внимание уделено методу накачка-зондирование, широко используемому для изучения сверхбыстрых процессов, который показал свою высокую эффективность в спектроскопических и оптических экспериментах, а также исследованиях, проводимых с помощью дифракции электронов и рентгеновского излучения, характеризующихся высоким пространственным и временным разрешением [9]. Второй раздел посвящен физическим свойствам кристалла ниобата лития (НЛ), используемому в качестве экспериментального образца, а также объемному фотовольтаическому эффекту (ОФЭ) в этом кристалле.

В **главе 2** на примере НЛ проведен анализ фотоиндуцированных явлений, способных приводить к существенным деформациям кристаллической решетки. Рассматривается случай, при котором интенсивность освещения много меньше порогового значения, характеризующего лучевую прочность материала (рис. 1).



Рисунок 1. Схематическое представление процессов формирования деформаций ζ в нецентросимметричных кристаллах при освещении на примере НЛ; $h\nu$ – энергия квантов света, T – температура, E – электрическое поле.

Наиболее длительным процессом является тепловое расширение кристаллической решетки, вызванное поглощением лазерного излучения. В результате нагрева в объеме кристалла возникает поле деформаций, характеризуемое тензором второго ранга ξ_{ij} . Нагрев и тепловое расширение в кристаллах некоторых классов симметрии приводит к возникновению добавочного значения поляризации и, как следствие, электрического поля E_{py} – проявлению пирозлектрического эффекта:

$$E_{py} = -p \frac{\Delta T}{\varepsilon \varepsilon_0} = -p \frac{J (1 - e^{-\mu l}) S t}{c_t \varepsilon \varepsilon_0}, \quad (1)$$

где p – пирозлектрический коэффициент, ε – диэлектрическая проницаемость материала, ε_0 – диэлектрическая постоянная, J – интенсивность лазерного излучения, c_t – удельная теплоемкость кристалла, μ – коэффициент поглощения веществом электромагнитного излучения заданной длины волны, l – толщина кристалла, S – площадь пятна засветки, t – время освещения.

В общем случае возникающее в кристалле электрическое поле E вызывает деформации посредством обратного пьезоэлектрического эффекта:

$$\xi_{ij} = d_{ijk} E_k, \quad (2)$$

где d_{ijk} – тензор пьезоэлектрических коэффициентов.

Электрическое поле в НЛ также формируется вследствие ОФЭ, обусловленного инжекцией фотоэлектронов с примесных уровней и их направленной миграции вдоль полярной оси. Напряженность электрического поля E_{sat} может достигать нескольких кВ/мм, и определяется как:

$$E_{sat} = \frac{I}{\sigma} = \frac{\mu G J}{\sigma_d + \sigma_{ph}(J)}, \quad (3)$$

где I – плотность фотоиндуцированного тока в кристалле, равная произведению коэффициента поглощения, константы Гласса G и интенсивности освещения; σ – проводимость кристалла, являющаяся суммой темновой проводимости σ_d и фотопроводимости σ_{ph} , линейно зависящей от интенсивности освещения. При этом время формирования электрического поля ОФЭ характеризуется временем релаксации Максвелла $\tau_M = \varepsilon\varepsilon_0/\sigma$.

Еще один механизм формирования фотоиндуцированных деформаций, наблюдаемый в нелинейных оптических кристаллах, обусловлен эффектом оптического выпрямления (англ. *optical rectification*), являющимся частным случаем сложения частоты. Напряженность электрического поля оптического выпрямления E_{OR} зависит от нелинейных свойств среды и интенсивности падающего излучения:

$$E_{OR} = \frac{\chi^{(0)}E^{(\omega)}E^{(\omega)}}{\varepsilon - 1} = \frac{2J\chi^{(0)}}{cn\varepsilon_0(\varepsilon - 1)}, \quad (4)$$

где $\chi^{(0)}$ – нелинейная восприимчивость второго порядка для нулевой частоты, $E^{(\omega)}$ – напряженность поля электромагнитной волны частотой ω , c – скорость света, n – показатель преломления. Время релаксации электронной поляризуемости, ответственной за оптическое выпрямление, связано с характерным временем взаимодействия световой волны со средой и лежит в диапазоне 10^{-16} - 10^{-14} с.

Комбинация оптического выпрямления и обратного пьезоэлектрического эффекта в случае непрерывного воздействия лазерного излучения интенсивностью $3,4$ Вт/см² приводит к относительному изменению межплоскостного расстояния величиной $7,4 \times 10^{-17}$ за времена 10^{-16} - 10^{-14} с. Пьезофотовольтаический эффект при тех же параметрах воздействия дает деформацию величиной $1,3 \times 10^{-5}$, формируемую за времена релаксации Максвелла – $19,8$ с. Наибольшие деформации обусловлены температурными эффектами: в случае теплового расширения кристаллической решетки их величина составляет $1,12 \times 10^{-4}$, а комбинация пьезоэлектрического и обратного пьезоэлектрического эффектов дает $6,3 \times 10^{-5}$. Оба температурных эффекта являются взаимосвязанными, формируемые ими деформации начинают наблюдаться за времена >30 с.

Таким образом, вклады отдельных эффектов могут быть разделены между собой исходя из временных характеристик и амплитуд формируемых ими деформаций [А1].

Глава 3 посвящена разработке комплексного аппаратно-методического подхода, основанного на методах рентгеновской дифрактометрии, для исследования динамики фотоиндуцированных процессов в функциональных кристаллических материалах, в частности обусловленных комбинацией объемного фотовольтаического и обратного пьезоэлектрического эффектов.

Методика лабораторной времяразрешающей рентгеновской дифрактометрии для изучения обратимых процессов, вызванных повторяющимся воздействием лазерного излучения.

Возникающие в кристалле деформации могут быть выражены через относительное изменение межплоскостного расстояния $\Delta d/d$, которое в рентгенодифракционном эксперименте проявляется в изменении углового положения пика $\Delta\theta$ кривой дифракционного отражения (КДО):

$$\xi = \frac{\Delta d}{d} = -ctg\theta_{\text{Бр}}\Delta\theta = -\Delta\theta\sqrt{\frac{4d^2}{\lambda^2} - 1}, \quad (5)$$

где $\theta_{\text{Бр}}$ – угол Брэгга измеряемого рефлекса, λ – длина волны излучения, d – межплоскостное расстояние.

Разделение вкладов различных фотоиндуцированных явлений, обладающих характерными временами и амплитудами, возможно за счет регистрации динамики структурных изменений кристалла с высоким пространственным и временным разрешением. Применение ряда комплементарных методик, например, реализация электрофизических измерений и регистрация кинетики температуры, позволяет оценить степень проявления отдельных эффектов для последующей интерпретации экспериментальных данных.

Экспериментальная установка была реализована на базе трехкристального рентгеновского спектрометра (ТПС-К). В установку было интегрировано дополнительное оборудование для проведения времяразрешающих рентгенодифракционных измерений в условиях воздействия лазерного излучения, а также комплементарных методик.

Времяразрешающая рентгенодифракционная методика предполагает регистрацию серии временных разверток интенсивности в различных угловых положениях в окрестности угла Брэгга, синхронизированную с воздействием лазерного излучения с заданными параметрами на кристалл [10]. Работа лазера, детектирующего оборудования и гониометрической системы синхронизировались с помощью последовательности TTL-импульсов с заданным временным профилем. Дискретизация сигнала с детектора осуществлялась с помощью многоканального анализатора с минимальной длительностью канала 100 нс. Регистрация дифрагированного рентгеновского излучения проводилась из центра освещенной лазерным пучком области кристалла.

Наносекундная рентгенодифракционная методика регистрации динамики обратимых лазерно-индуцированных деформационных процессов.

Применение комплексного подхода на синхротронном источнике рентгеновского излучения существенно расширяет его возможности, что в частности обусловлено увеличением пространственного и временного разрешения эксперимента [A3].

Наносекундная синхротронная рентгенодифракционная методика осуществлялась в схеме «оптическая накачка – рентгеновское зондирование». Установка была собрана на базе станции рентгеновской кристаллографии и физического материаловедения (РКФМ) Курчатовского источника синхротронного излучения КИСИ-Курчатов (НИЦ «Курчатовский институт»).

Экспериментальная установка состоит из модуля рентгенодифракционных измерений (станция РКФМ), оптической системы, включающей в себя импульсный лазер ($\lambda_{2\omega} = 532$ нм, $\tau = 4$ нс, $E_{\max} \sim 20$ мДж) и оптику для вывода лазерного пучка на образец, а также системы синхронизации (рис. 2). Накачка образца осуществлялась импульсами с относительно малой энергией (плотность потока энергии ~ 1 Дж/см²), что позволило избежать существенного нагрева ($\Delta T_{\text{обр}} \approx 1 - 2^\circ\text{C}$) и проявления различных нелинейных процессов, затрудняющих интерпретацию экспериментальных данных.

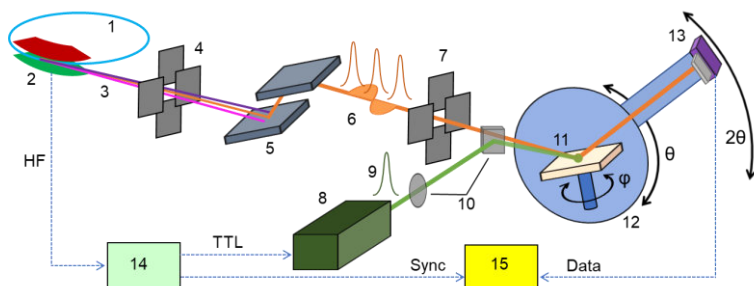


Рисунок 2. Схема эксперимента: (1) – накопительное кольцо синхротрона, (2) – поворотный магнит, (3) – «белый» синхротронный пучок, (4) – входная маска «белого» пучка, (5) – двухкристальный монохроматор Si 111, (6) – монохроматизированный σ-поляризованный синхротронный пучок с временной структурой банча, (7) – рентгеновские щели, (8) – лазер, (9) – лазерные импульсы, (10) – оптические элементы, (11) – образец, (12) – многокружный гониометр, (13) – пролетный фотодиодный детектор, (14) – система синхронизации, (15) – осциллограф.

Работа лазера и детектирующего оборудования синхронизировалась с периодом обращения электронных сгустков накопительного кольца [11]. Система синхронизации была реализована с помощью массива программируемых логических интегральных схем (ПЛИС). Внешним тактовым сигналом для системы служил высокочастотный сигнал генератора кольцевого накопителя (ВЧ-сигнал), работающего на частоте 2,415 Гц. Частоту управляющего сигнала прореживали до 5 Гц (частоты следования импульсов лазера). Сигналы с данной частотой инициировали запуск лампы и управление электрооптического затвора с заданной временной задержкой между импульсами. Дифрагированный сигнал регистрировался времяпролетным детектором и записывался во временную развертку осциллографа, обеспечивающего частоту дискретизации 1 ГГц. Суммарная длительность временного окна осциллографа составляла 32,768 мкс, что обеспечивало высокую статистику регистрируемых данных [А4].

Запись временных разверток интенсивности проводилась при различной временной задержке между лазерным импульсом и ВЧ-сигналом с генератора накопительного кольца с шагом 5 нс в диапазоне, включающем полный период обращения электронных сгустков для усреднения сигнала. Полученные данные объединялись в трехмерный массив в координатах “угол-время-интенсивность” $[\theta, t, I]$, содержащий в

себе информацию о динамике КДО кристалла при воздействии лазерного импульса.

В главе 4 представлены результаты реализации комплексного подхода на лабораторном дифрактометре и анализа полученных данных. В качестве модельного образца использовался монокристалл НЛ с примесью железа (Fe_2O_3 0,02 wt. %) в виде плоскопараллельной пластины размерами $12 \times 12 \text{ мм}^2$ и толщиной 1,33 мм. В рамках предварительных измерений было определено время релаксации Максвелла ($\tau_M \approx 20 - 25 \text{ с}$).

Времяразрешающие рентгенодифракционные измерения при воздействии лазерного излучения ($J = 3,4 \text{ Вт/см}^2$, $\lambda = 520 \text{ нм}$) проводились для трех кратных порядков отражения 006, 0012 и 0018 [A2]. По полученным данным была построена динамика положения центра масс КДО, демонстрирующая сложное деформационное поведение, обусловленное возникновением комплекса фотоиндуцированных явлений (рис. 3).

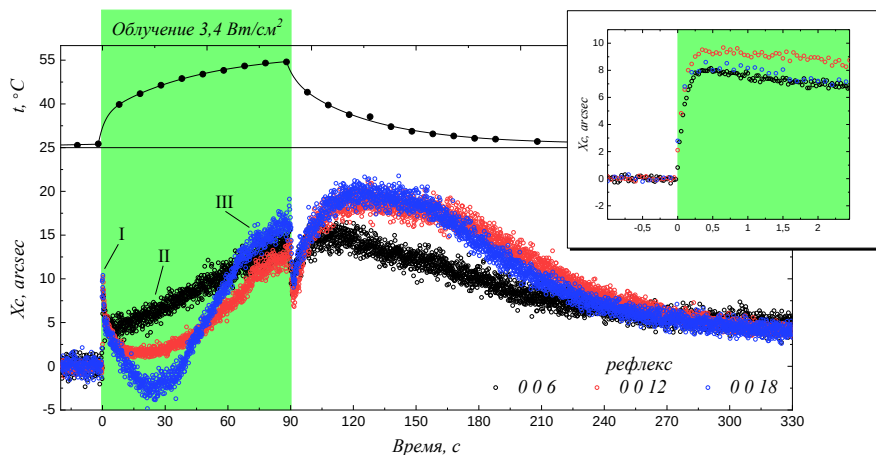


Рисунок 3. Динамика изменения температуры (верхняя панель) и положения рентгенодифракционного пика X_c (нижняя панель) для трех кратных порядков отражения, полученная методом времяразрешающей рентгеновской дифрактометрии при воздействии лазерного излучения; процессу в области I соответствует миграция носителей заряда, II – пьезофотовольтаический эффект, III – температурные эффекты (тепловое расширение и пьезоэлектрический эффект).

Исходя из полученных экспериментальных данных, для рефлекса 0012 была проведена оценка параметров деформаций, которая затем сравнивалась с результатами анализа из главы 2 (табл. 1).

Вклад оптического выпрямления много меньше остальных эффектов по величине деформаций. Наиболее быстрый из экспериментально зарегистрированных процессов предположительно связан с током фотоэлектронов, амплитуда которого зависит от фотопроводимости. Экспериментальные и расчетные значения пьезофотовольтаических деформаций хорошо соотносятся между собой. Наибольший вклад в деформационную картину вносят самые медленные тепловые эффекты.

Таблица 1. Сводные оценки вкладов величин деформаций (направление [001], компонента ξ_{33}) различных фотоиндуцированных эффектов и оценки времен их формирования, полученные расчетом из экспериментальных и литературных данных: () – экспериментально определенные значения; (**) – экспериментально определенная суперпозиция взаимосвязанных эффектов.*

Эффект	Деформация ξ_{33}	Характерное время, с
Оптическое выпрямление + пьезоэлектрический эффект	$7,4 \cdot 10^{-17}$	10^{-16} - 10^{-14}
Фотоиндуцированный ток поляронов	$3,5 \cdot 10^{-5}$ (*)	$<10^{-3}$
Пьезофотовольтаический эффект	$1,3 \cdot 10^{-5}$ $1,4 \cdot 10^{-5}$ (*)	19.8 20-25 (*)
Тепловое расширение	$1,12 \cdot 10^{-4}$ $1,50 \cdot 10^{-4}$ (**)	>30 (**)
Пироэлектрический + пьезоэлектрический эффект	$6,3 \cdot 10^{-5}$ $1,50 \cdot 10^{-4}$ (**)	>30 (**)

В **главе 5** представлены результаты апробации комплексного подхода на источнике КИСИ-Курчатов. В качестве экспериментальных образцов использовались номинально чистый НЛ и легированный железом НЛ:Fe (Fe_2O_3 wt. 0,1%), изготовленные из монокристаллов в виде плоскопараллельных пластин среза (001) с поперечными размерами $10 \times 10 \text{ мм}^2$ и толщиной 0,5 мм.

Динамика КДО кристаллов регистрировалась для рефлекса 0012 с временным разрешением в 1 нс. Общая длительность зарегистрированной динамики составляет 32,768 мкс. На рис. 4 представлен в виде трехмерной карты фрагмент динамики образца НЛ:Fe длительностью 900 нс, который включает отклик кристалла на лазерный импульс и два полных периода

обращения электронных сгустков накопительного кольца $T_{\text{нк}}$. Момент воздействия импульса накачки обозначен на графике зеленой чертой, ширина которой соответствует его длительности. Отклик образца на воздействие также был построен в большем масштабе во временном диапазоне от -50 до +100 нс, где 0 – момент воздействия лазерного импульса.

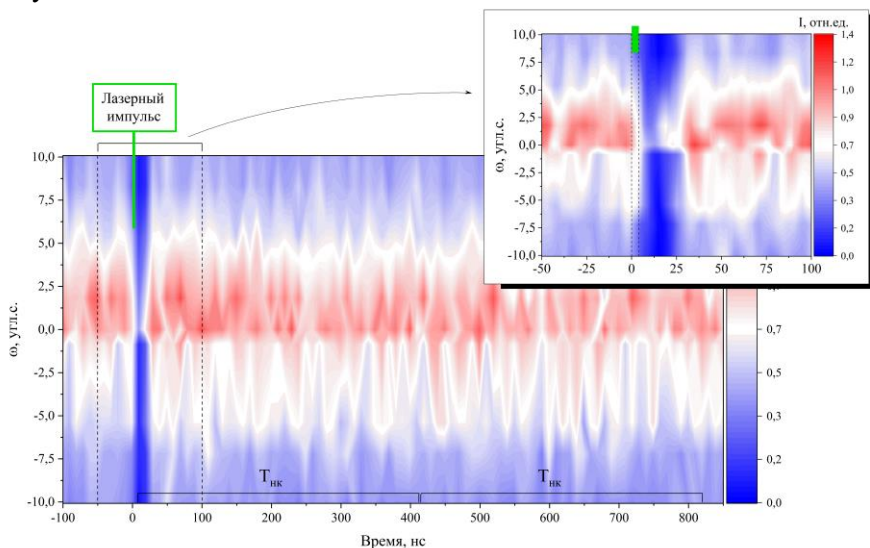


Рисунок 4. Динамика КДО кристалла НЛ:Fe для рефлекса 0012 при воздействии лазерного импульса ($\tau = 4$ нс, $E = 2,6$ мДж); зеленой чертой отображен момент воздействия лазерного импульса, ее ширина соответствует длительности импульса накачки. $T_{\text{нк}}$ – период обращения электронных сгустков накопительного кольца синхротронного источника.

Динамику кристалла НЛ:Fe (рис. 4) можно представить в виде отдельных КДО, отчетливо демонстрирующих падение интегральной интенсивности пика и сложную трансформацию формы кривой в результате воздействия лазерного импульса (пунктирной линией обозначена исходная КДО) (рис. 5а). На рис. 5б представлен результат аппроксимации полученных данных: динамика положения центра масс КДО и интегральной интенсивности кристалла НЛ:Fe, а также динамика интегральной интенсивности номинально чистого НЛ. Из графика хорошо видно, что отклик наблюдается в течение ~ 35 нс после воздействия импульса.

Необычной особенностью зарегистрированного эффекта является задержанный во времени отклик КДО, наблюдаемый на наносекундном временном масштабе после воздействия лазерного импульса. Проявление различных нелинейных и температурных эффектов было ограничено малой энергией лазерного импульса накачки, а регистрация процесса распространения акустической деформационной волны была невозможна, поскольку исходя из скорости звука для НЛ оно будет наблюдаться на временах сотен пикосекунд. Таким образом, наблюдаемый эффект можно отнести к процессу формирования экранирующего приповерхностного слоя термализованными фотоэлектронами.

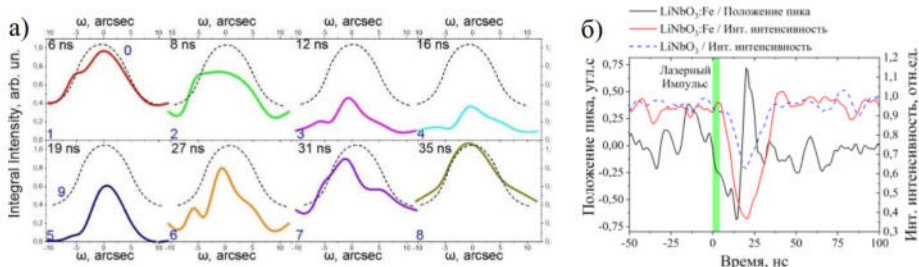


Рисунок 5. (а) КДО кристалла НЛ:Fe рефлекса 0012 в различные моменты времени после воздействия лазерного импульса (пунктирная линия – исходная КДО); (б) динамика положения пика КДО (черная кривая) и интегральной интенсивности (красная кривая) кристалла НЛ:Fe в сравнении с динамикой интегральной интенсивности для номинально чистого НЛ (синяя пунктирная кривая). Зеленая область соответствует длительности лазерного импульса.

При поглощении лазерного импульса на примесных уровнях кристалла НЛ:Fe происходит пространственное разделение электрического заряда в результате миграции фотоэлектронов вдоль вектора спонтанной поляризации согласно механизму ОФЭ. В процессе миграции за счет взаимодействия с кристаллической решеткой фотоэлектроны термализуются и скапливаются в приповерхностной области вблизи поверхности +с полярного кристалла. За счет формирования приповерхностных электрических полей высокой напряженности ($E_{\text{ЭК}} = 1,1$ кВ/мм спустя 7 нс после воздействия лазерного импульса) возникает деформация, обусловленная обратным пьезоэлектрическим эффектом ($\Delta d/d = 0,68 \times 10^{-5}$). Впоследствии КДО

возвращается в исходное состояние в результате рекомбинации фотоэлектронов. Описанный выше механизм схематически изображен на (рис. 6).

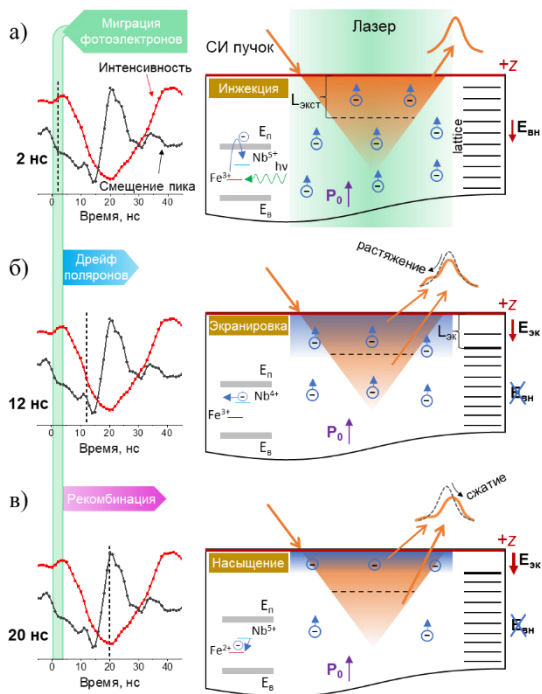


Рисунок 6. Схематическое представление процесса эволюции параметров КДО в результате миграции фотоэлектронов и последующего формирования экранирующего заряженного слоя спустя (а) 2 нс, (б) 12 нс и (в) 20 нс после воздействия лазерного импульса. $E_{вн}$ – внутреннее электрическое поле, направленное антипараллельно вектору спонтанной поляризации P_0 ; $E_{эк}$ – экранирующее электрическое поле, характеризуемое глубиной экранировки $L_{эк}$; $L_{экт}$ – глубина экстинкции рентгеновского излучения.

Представленная модель подтверждается результатами, полученными для номинально чистого НЛ. За счет наличия примесей и дефектов, в данном кристалле также наблюдается отклик на воздействие лазерного импульса. Амплитуда наблюдаемого эффекта в нелегированном образце заметно меньше, что обусловлено существенно меньшей концентрацией центров поглощения излучения и, соответственно, меньшей концентрацией фотоэлектронов в сравнении с НЛ:Fe.

ВЫВОДЫ

1. Предложен и реализован комплексный аппаратно-методический подход, позволяющий исследовать обратимые фотоиндуцированные явления в функциональных кристаллических материалах и разделять их между собой исходя из параметров формируемых ими деформаций, основанный на применении методов рентгеновской дифрактометрии и комплементарных методов.

2. Впервые на лабораторном дифрактометре реализована экспериментальная схема «оптическая накачка – рентгеновское зондирование» для проведения времяразрешающих рентгенодифракционных исследований фотоиндуцированных процессов в монокристалле ниобата лития с временным разрешением 25 мс, предельное временное разрешение которой составляет 100 нс.

3. На основе предложенного комплексного подхода разработана времяразрешающая синхротронная методика в экспериментальной схеме «оптическая накачка – рентгеновское зондирование», позволяющая исследовать обратимые фотоиндуцированные процессы (в том числе относительно долгие) в субмиллисекундном масштабе времен с субнаносекундным временным разрешением. Данная методика была реализована для регистрации динамики пьезофотовольтаического эффекта в кристаллах ниобата лития и ниобата лития, легированного железом, с временным разрешением в 1 нс.

4. При помощи разработанного комплексного подхода экспериментально обнаружен и отделен от других фотоиндуцированных эффектов пьезофотовольтаический эффект в кристалле ниобата лития с примесью железа бесконтактным способом в режиме разомкнутой цепи, а также определены его основные параметры (временные характеристики и амплитуда).

5. В кристалле ниобата лития с примесью железа зарегистрирован процесс направленной миграции фотоэлектронов и формирования их скоплением двойного электрического слоя исходя из динамики изменения параметров рентгенодифракционных картин, наблюдаемой в течение ~35 нс после воздействия лазерного импульса.

ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Yan H., Feng Z., Shang S., et al. / A piezoelectric, strain-controlled antiferromagnetic memory insensitive to magnetic fields // *Nature nanotechnology* **14**(2), 131-136 (2019).
2. Hunter D., Osborn W., Wang K. et al. / Giant magnetostriction in annealed $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ thin-films // *Nature communications* **2**, 518 (2011).
3. Ковальчук М.В., Благов А.Е., Куликов А.Г. и др. / Возникновение необычных неферроидных доменов в кристаллах TeO_2 под действием внешнего электрического поля // *Кристаллография* **59**(6), 950 (2014).
4. Sturman B.I., Fridkin V.M. The Photovoltaic and Photorefractive Effects in Noncentrosymmetric Materials. Philadelphia: Gordon and Breach Sci. Publ., 1992. 238 p.
5. Zhukov S.G., Fetisov G.V., Aslanov L.A. / The influence of laser radiation on X-ray diffraction in ferroelectric crystals with nonlinear optical properties // *Journal of applied crystallography* **24**(1), 74-76 (1991).
6. Abramov N.A., Voronov V.V., Kuzminov Y.S. / Local photodeformation in crystals of LiNbO_3 : Fe // *Ferroelectrics* **22**(1), 649 (1978).
7. Calamitotou M., Chrysanthakopoulos N., Papaioannou G. et al. / Dynamics of photodeformations and space charge field in photorefractive Fe:LiNbO_3 studied with synchrotron area diffractometry // *Journal of Applied Physics* **102**(8) (2007).
8. Holtz M., Hauf C., Salvador A.A.H. et al. / Shift-current-induced strain waves in LiNbO_3 mapped by femtosecond x-ray diffraction // *Physical Review B* **94**(10), 104302 (2016).
9. Ищенко А. А., Фетисов Г. В., Асеев С. А. Методы детектирования ультрабыстрой динамики вещества ФИЗМАТЛИТ, М., 2022. 520 с.
10. Marchenkov N.V., Kulikov A.G., Petrenko A.A., et al. / Laboratory time-resolved X-ray diffractometry for investigation of reversible structural changes induced in single crystals by external electric field // *Review of Scientific Instruments* **89**(9), (2018).
11. Potemkin F.V., Mareev E.I., Garmatina A.A., et al. / Hybrid x-ray laser-plasma/laser-synchrotron facility for pump-probe studies of the extreme state of matter at NRC “Kurchatov Institute” // *Review of Scientific Instruments* **92**(5), (2021).

СПИСОК АВТОРСКИХ ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Научные статьи, опубликованные в журналах Scopus, WoS и РИНЦ:

- A1. **Ф.С. Пиляк**, А.Г. Куликов, Ю.В. Писаревский, А.Е. Благов, М.В. Ковальчук. Разделение механизмов фотоиндуцированных деформаций в кристаллах с помощью времяразрешающей рентгеновской дифрактометрии // *Кристаллография* **67**, 850-858 (2022), DOI: 10.31857/S0023476122050125
- A2. **F.S. Pilyak**, A.G. Kulikov, V.M. Fridkin, Yu.V. Pisarevsky, N.V. Marchenkov, A.E. Blagov, M.V. Kovalchuk. Bulk piezo-photovoltaic effect in LiNbO_3

// *Physica B: Condensed Matter* **604**, 412706 (2021), DOI: 10.1016/j.physb.2020.412706

A3. Marchenkov N., Mareev E., Kulikov A., **Pilyak F.**, Ibragimov E., Pisarevskii Yu., Potemkin F. Hybrid approach for multiscale and multimodal time-resolved diagnosis of ultrafast processes in materials via tailored synchronization of laser and X-ray sources at MHz repetition rates // *Optics* **5**(1), 1-10 (2024), DOI: 10.3390/opt5010001

A4. М.В. Ковальчук, Е.И. Мареев, А.Г. Куликов, **Ф.С. Пиляк**, Н.Н. Обыденнов, Ф.В. Потёмкин, Ю.В. Писаревский, Н.В. Марченков, А.Е. Благов. Субнаносекундная рентгенодифракционная методика изучения лазерно-индуцированных поляризационно-зависимых процессов на КИСИ-Курчатов // *Кристаллография* **69**, 52-60 (2024), DOI: 10.31857/S0023476124020053

A5. **F.S. Pilyak**, E.I. Mareev, A.G. Kulikov, N.M. Asharchuk, N.N. Obydenov, Y.V. Pisarevsky, A.E. Blagov, F.V. Potemkin, M.V. Kovalchuk. Charge separation and directed migration of photoelectrons in LiNbO₃:Fe crystals after excitation by nanosecond laser pulses // *Physical Review B* **110**(10), L100302 (2024), DOI: 10.1103/PhysRevB.110.L100302

Иные публикации:

A6. **F.S. Pilyak**, A.E. Blagov, A.G. Kulikov, et al. Structural changes in LiNbO₃:Fe single crystals induced by high intensity laser irradiation // RACIRI Summer School 2019 / Svetlogorsk, Kaliningrad District. Russia. 2019. P. 59.

A7. **Пиляк Ф.С.**, Благов А.Е., Куликов А.Г., и др. Рентгенодифракционные исследования структурных изменений в кристаллах LiNbO₃, вызванных воздействием лазерного излучения // Труды двенадцатого ежегодного заседания Научного Совета РАН по физике конденсированных сред и научно-практического семинара «Актуальные проблемы физики конденсированных сред» / Черногловка. 2019.

A8. **Пиляк Ф.С.**, Куликов А.Г., Фридкин В.М., и др. Обнаружение и исследование объемного пьезофотовольтаического эффекта в кристаллах ниобата лития легированных железом // Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов-2021» / Московский Государственный Университет им. М.В. Ломоносова. Москва. 2021.

A9. **Пиляк Ф.С.**, Куликов А.Г., Фридкин В.М., и др. Перестройка реальной структуры кристалла LiNbO₃:Fe, индуцированная лазерным излучением // Девятая междунар. конф. «Кристаллофизика и деформационное поведение перспективных материалов» / Национальный исследовательский технологический университет «МИСИС». Москва. 2021. С. 139.

A10. **Пиляк Ф.С.**, Куликов А.Г., Писаревский Ю.В., и др. Разделение вкладов фотоиндуцированных деформационных процессов в кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ с помощью времяразрешающей рентгеновской дифрактометрии // IX Всероссийская научная молодежная школа-конференция "Химия, физика, биология: пути интеграции" 20-22 апреля 2022 г. / Москва. 2022. С. 131–132. ISBN: 978-5-6045579-5-2.

A11. **F.S. Pilyak**, A.G. Kulikov, E.S. Ibragimov, et al. A Complex X-ray Diffraction Technique for Studying Electrophysical Properties and Photovoltaic Processes in Crystals // XIV International Symposium "Radiation from Relativistic Electrons in Periodic Structures" & VIII International Conference "Electron, Positron, Neutron and X-ray Scattering under the External Influences" / Yerevan-Tsaghkadzor, Republic of Armenia. 2023. P. 82-83. ISBN: 987-9939-1-1735-5.

A12. Е.И. Мареев, А.Г. Куликов, **Ф.С. Пиляк**, и др. Синхротронная времяразрешающая методика регистрации лазерно-индуцированных деформаций, и ее реализация для наблюдения пьезофотовольтаического эффекта в ниобате лития // Международный форум природоподобных технологий Курчатов ФСНИ-2023. Москва. 2023.

A13. Патент №2830098 Российская Федерация, МПК G01N 23/20 (2006.01), МПК G01N 25/00 (2006.01). Устройство для регистрации рентгенодифракционных параметров кристалла при воздействии лазерного излучения: №2023131090: заявлено 28.11.2023: опубликовано 12.11.2024 / Куликов А.Г., **Пиляк Ф.С.**, Писаревский Ю.В., Благов А.Е., Ковальчук М.В.; патентообладатель Федеральное государственное бюджетное учреждение «Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт». – 12 с. : 4 ил.

Для заметок