

Кинетика фотоиндуцированной оптической анизотропии в оксидном стекле

М. К. Балакирев¹⁾, В. А. Смирнов

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 5 декабря 2002 г.

Долгоживущая оптическая анизотропия, порождаемая в стеклах бихроматическим взаимнокогерентным излучением, связана с накоплением встроенного электрического поля. В рамках феноменологической модели, учитывающей поляризационный и токовый механизмы образования поля и проводимость среды, исследована кинетика фотоиндуцированной анизотропии. Комбинация токового и поляризационного механизмов приводит к новым эффектам. Процессы накопления и темновой релаксации анизотропии имеют немонотонный характер. При достаточно большой и быстрорелаксирующей фотопроводимости возможна “скрытая запись”, при которой в течение бихроматического освещения анизотропия отсутствует, но после выключения света она возникает и медленно релаксирует за счет темновой проводимости.

PACS: 42.25.–p

Известно [1–3], что при мультихроматическом когерентном освещении центросимметричная среда становится оптически анизотропной. Вследствие этого в среде возникает изменение показателя преломления и появляются эффективные поляризуемости четных порядков. Изменение поляризуемостей сопровождается богатым спектром наблюдаемых эффектов, отсутствующих в невозмущенной среде: генерацией второй гармоники [1, 2], самодифракцией [4], вырожденным параметрическим усилением света [5] и др. [6, 7]. Такое обстоятельство привлекает внимание исследователей, поскольку открывает возможности широких научных и практических применений.

Природа анизотропии связана с образованием в среде долгоживущего встроенного электрического поля. Детальные микроскопические механизмы образования такого поля весьма разнообразны, но все они базируются на пространственной асимметрии вероятности оптических переходов под воздействием мультихроматического когерентного света. С феноменологической точки зрения принципиальным является вопрос о кинетике долгоживущей фотоиндуцированной анизотропии и параметрах, определяющих время насыщения и время жизни. Этим вопросам и посвящено настоящее сообщение.

Пусть среда освещается взаимнокогерентными источниками света основной и удвоенной частот:

$$\mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_m(\mathbf{r}) \exp i(\mathbf{k}_m \mathbf{r} - m\omega t + \varphi_m) + \text{с.с.},$$

$$\mathbf{E}_m(\mathbf{r}) = \mathbf{e}_m E_m(\mathbf{r}),$$

где $m = 1, 2$ выделяют величины, относящиеся к основной и удвоенным частотам, соответственно, \mathbf{k}_m, φ_m – волновые векторы и фазы, $\mathbf{e}_m, E_m(\mathbf{r})$ – поляризации и огибающие излучений.

В системе локализованных электронных состояний такое излучение приводит к пространственной асимметрии оптических переходов электронов между локализованными уровнями. При этом часть электронов вследствие близнецовой рекомбинации возвращается в исходное состояние с некоторым временем τ . Такой механизм порождает в среде долгоживущую поляризацию $\mathbf{P}_s(t, \mathbf{r})$ и соответствующее электрическое поле $\mathbf{E}_p(t, \mathbf{r})$. Другая часть асимметрично возбужденных электронов переносится на большие расстояния, порождая в среде постоянную плотность тока \mathbf{J}_{CPG} . Последнее известно как когерентный фотогальванический эффект (КФГЭ) [8–10]. Разделение носителей током \mathbf{J}_{CPG} приводит к появлению объемного заряда $\rho_J(t, \mathbf{r})$ и соответствующего электрического поля $\mathbf{E}_q(t, \mathbf{r})$. Если среда обладает конечной проводимостью σ , то поля будут экранироваться и возникнет компенсирующий объемный заряд $\rho_\sigma(t, \mathbf{r})$. Таким образом, полный объемный заряд $\rho = \rho_\sigma(t, \mathbf{r}) + \rho_J(t, \mathbf{r})$, а полное электрическое поле $\mathbf{E}(t, \mathbf{r})$ есть сумма полей поляризации и объемного заряда. Накопление и релаксация $\mathbf{E}(t, \mathbf{r})$ зависят от парциальных эффективностей возбуждения, времени τ и проводимости среды.

¹⁾e-mail: balak@isp.nsc.ru

Рассмотрим эти процессы подробнее. Определим полную плотность потока носителей для асимметричных переходов как

$$\mathbf{S} = \mathbf{j} A E_1^2 E_2 \cos(\Delta \mathbf{k} \mathbf{r} + \Delta \varphi),$$

где $\Delta \mathbf{k} = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$, $\Delta \varphi = 2\varphi_1 - \varphi_2$, \mathbf{j} – единичный вектор в направлении асимметричного переброса электронов:

$$\mathbf{j} = (\mathbf{e}_1 (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2) C_1 + \mathbf{e}_2 C_2) |(\mathbf{e}_1 (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2) C_1 + \mathbf{e}_2 C_2)|^{-1},$$

$C_{1,2}$ – фотогальванические константы, A – эффективный фотогальванический коэффициент: $A = |(\mathbf{e}_1 (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2) C_1 + \mathbf{e}_2 C_2)|$.

Будем считать, что накопление объемного заряда ρ и поля $\mathbf{E}(t, \mathbf{r}) = E(t)\mathbf{E}(\mathbf{r})$ описывается уравнениями

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho &= -\operatorname{div}(\sigma \mathbf{E}(t, \mathbf{r}) + \mathbf{J}_{CPG}), \\ \operatorname{div} \mathbf{D} &= 4\pi \rho; \quad \mathbf{J}_{CPG} = A_1 \mathbf{S}. \end{aligned} \quad (1)$$

Диффузией носителей заряда мы пренебрегаем.

Материальное уравнение для индукции \mathbf{D} представим в виде

$$\mathbf{D} = \varepsilon \mathbf{E}(t, \mathbf{r}) + 4\pi \mathbf{P}_s(t, \mathbf{r}). \quad (2)$$

Изменение $\mathbf{P}_s(t, \mathbf{r})$ под воздействием взаимнокогерентного излучения будем описывать следующей моделью:

$$\frac{d}{dt} \mathbf{P}_s = -\frac{\mathbf{P}_s}{\tau} + \frac{A_2}{\tau} \mathbf{S} \tau. \quad (3)$$

В (1)–(3) мы ввели $A_{1,2}$ – постоянные, характеризующие относительные доли асимметрично фотовозбужденных электронов для фотогальванического тока – A_1 и поляризации – A_2 , так что $A_1 + A_2 = 1$.

Исключая объемный заряд из (1), получим:

$$\begin{aligned} \left(\frac{d}{dt} E(t) + \frac{1}{\tau_m} E(t) \right) \operatorname{div} \mathbf{E}(\mathbf{r}) + \\ + \left(\frac{A_2}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + \frac{A_1}{\tau} \right) \operatorname{div} \frac{4\pi \tau}{\varepsilon} \mathbf{S} = 0, \end{aligned} \quad (4)$$

$$\tau_m \equiv 4\pi \sigma \varepsilon^{-1}.$$

Уравнения (3)–(4) при нулевых начальных условиях имеют следующие решения:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_s(t, \mathbf{r}) &= A_2 \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right) \mathbf{P}(\mathbf{r}), \\ \mathbf{P}(\mathbf{r}) &= \mathbf{S} \tau; \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(t, \mathbf{r}) &= \frac{\tau_m}{\tau - \tau_m} \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right) A_2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \\ &- \frac{\tau_m}{\tau - \tau_m} \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_m}\right) \right) \left(1 - A_1 \frac{\tau_m}{\tau} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (6)$$

Пространственное распределение поля $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ находится из уравнения

$$\operatorname{div}(\varepsilon \mathbf{E}(\mathbf{r})) = 4\pi \operatorname{div}(\tau \mathbf{S})$$

и описывает форму так называемых фотоиндуцированных решеток [3].

При равных временах релаксации мы имеем:

$$\rho(t, \mathbf{r}, \tau \rightarrow \tau_m) = (1 - \exp(-t/\tau_m)) (A_2 + A_1) \rho(\mathbf{r}),$$

$$\mathbf{E}(t, \mathbf{r}, \tau \rightarrow \tau_m) = -(1 - \exp(-t/\tau_m)) A_1 \mathbf{E}(\mathbf{r}).$$

Наконец, процесс релаксации накопленного поля описывается выражением

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(t, \mathbf{r}) &= \frac{\tau_m}{\tau - \tau_m} \left(A_2 \left(1 - \exp\left(-\frac{T}{\tau}\right) \right) \times \right. \\ &\times \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - \left[\left(1 - \exp\left(-\frac{T}{\tau_m}\right) \right) \times \right. \\ &\left. \left. \times \left(1 - A_1 \frac{\tau_m}{\tau} \right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_m}\right) \right] \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}), \end{aligned}$$

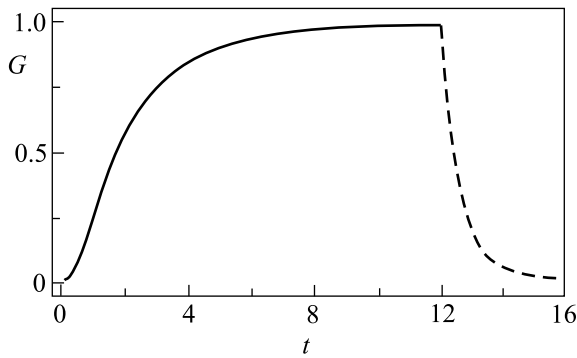
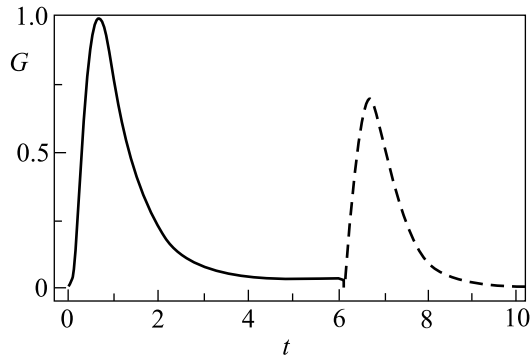
в котором время t отсчитывается от момента окончания освещения, а T – длительность облучения.

Обсудим кратко полученный результат.

1. Накопление. Электрические поля объемного заряда и фотоиндуцированной поляризации имеют разные знаки и частично компенсируют друг друга. Поэтому результирующее поле может быть меньше любого из них. При достаточной длительности освещения поле асимптотически стремится к стационарному значению $\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = -A_1 \tau_m \tau^{-1} \mathbf{E}(\mathbf{r})$. Кинетика накопления определяется параметром $\xi = A_1 \tau_m \tau^{-1}$.

Если $\xi > 1$, то полное поле с течением времени монотонно выходит на стационарное значение (см. рис.1, $T = 10\tau$, $\xi = 1.2$). Ниже на всех рисунках мы приводим для наглядности относительную величину $G = E^2(t) E_M^{-2}$, которая характеризует эффективность фотоиндуцированной генерации второй гармоники (ФГВГ). E_M^2 – максимальное значение на графике. Сплошными линиями обозначено накопление, штриховыми – темновая релаксация. Время нормировано на τ .

Если $\xi < 1$, то полное поле вначале достигает максимума и затем стремится к значению $E_s(\mathbf{r})$,

Рис.1. Кинетика квадрата поля при $\xi > 1$ Рис.2. Кинетика квадрата поля при $\xi < 1$

которое может быть весьма малым по сравнению с максимальным (см. рис.2, $T = 6\tau$, $\xi = 0.03$). Подобное поведение ФГВГ наблюдалось недавно в стекле ТФ-4 [11], и ранее в волоконном световоде [12].

2. Релаксация. Характер релаксации поля зависит от ξ , длительности накопления T , и относительных величин накопленных парциальных полей. Если $\xi > 1$, то имеет место обычная релаксация (см. рис.1, $T = 10$, $\xi = 1.2$). Если $\xi < 1$, а величины накопленных к моменту $t = T$ полей соизмеримы, то в начале релаксации на отрезке времени $t \sim \tau$ поле нарастет до величины, соответствующей накопленному зарядовому полю, а затем будет медленно релаксировать к нулю (рис.2, $T = 6\tau$, $\xi = 0.03$). Интересно, что на отрезке времени $t \sim \tau$ поле может поменять знак, если поляризационное поле было больше зарядового. Последнее обстоятельство может существенным образом изменить наблюдаемую динамику ФГВГ. Подчеркнем, что длительность освещения определяет лишь амплитуду решетки, а время ее существования практически равно τ_m и может быть весьма большим.

3. Влияние фотопроводимости. Пусть проводимость поддерживается за счет фотовозбужденных носителей, которые "мгновенно" рекомбинируют за

время $\tau_R \ll \tau_m, \tau$. Иными словами, будем считать, что после выключения освещения величина проводимости скачком возвращается к темновому значению. Значение времени максвелловской релаксации $\tau_m(|E_1|^2, |E_2|^2) = T_m$ в освещенном образце примем много меньше темнового: $T_m \ll \tau_m$.

В таком случае для анализа накопления можно воспользоваться полученными уравнениями записи решеток с заменой $\tau_m \rightarrow T_m$, а релаксацию поля описывать выражением

$$E(t) = \frac{P_s}{\tau - \tau_m} \tau_m \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + \left(E(T) - \frac{P_s}{\tau - \tau_m} \tau_m\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_m}\right),$$

где

$$E(T) = \frac{T_m}{(\tau - T_m)} A_2 \left(1 - \exp\left(-\frac{T}{\tau}\right)\right) - \frac{T_m}{(\tau - T_m)} \left(1 - \exp\left(-\frac{T}{\tau_m}\right)\right) \left(A_2 + A_1 - A_1 \frac{T_m}{\tau}\right),$$

$$P_s(T) = A_2 \left(1 - \exp\left(-\frac{T}{\tau}\right)\right).$$

Можно видеть, что при таких условиях записи значительно уменьшается максимально достижимый уровень поля и в процессе дальнейшей записи поле стремится к нулю с характерным временем T_m . Темновая релаксация ведет себя необычно: после выключения света поле за короткое время τ_R достигает максимума, а затем релаксирует к нулю с темновым временем τ_m (рис.3).

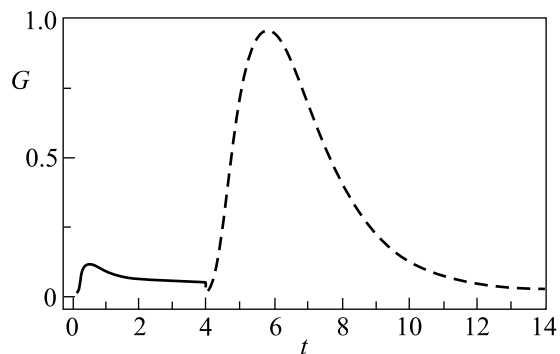


Рис.3. Кинетика квадрата поля при большой фотопроводимости

Физику явления можно пояснить, полагая для простоты величину фотопроводимости большой, $T_m \ll \tau$, а величину \mathbf{J}_{CPG} пренебрежимо малой. В таком случае при записи поле поляризации полностью компенсируется полем экранирующего заряда $\rho_\sigma(t, \mathbf{r})$. После прекращения освещения поляризация

релаксирует к нулю со временем τ , но остается поле экранирующего заряда, которое может быть весьма большим. Однако это поле теперь медленно релаксирует к нулю за счет малой темновой проводимости. Интересно, что при больших значениях фотопроводимости процесс выглядит как “скрытая запись” – нет никаких признаков оптической анизотропии в течение освещения, но после выключения света она обнаруживается. В то же время, если τ мало, можно быстро записать фотоиндуцированную решетку, которая будет существовать длительное время.

Такое явление может оказаться полезным для практических приложений. Подчеркнем то обстоятельство, что фотопроводимость может создаваться сторонним источником света и регулироваться независимым образом. Это позволяет не только регулировать процесс в тех случаях, когда фотопроводимость от бихроматического освещения мала, но и дает инструмент для изучения самой фотопроводимости.

Отметим еще, что при неоднородном освещении, когда T_m является также пространственно неоднородным, картина явления может существенно измениться. Однако обсуждение этого вопроса выходит за рамки данного сообщения.

Авторы благодарят М.В. Энтина за полезные дискуссии. Работа выполнена при финансовой поддерж-

ке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 99-02-39044 и # 02-02-17695).

1. Ю. В. Глущенко, В. Б. Смирнов, *Оптика и спектроскопия* **72**, 990 (1992).
2. Д. С. Дианов, Е. М. Стародубов, *Квантовая электроника* **22**, 419 (1995).
3. М. К. Balakirev, *Phys. of Vibrations* **6**, 233 (1998).
4. М. К. Балакирев, В. А. Смирнов, *Письма в ЖЭТФ* **61**, 537 (1995); М. К. Балакирев, Л. И. Вострикова, В. А. Смирнов, *Квантовая электроника* **32**, 546 (2002).
5. М. К. Balakirev, L. I. Vostrikova, and V. A. Smirnov, *Optics Commun.* **178**, 181 (2000).
6. М. К. Балакирев, Л. И. Вострикова, В. А. Смирнов, *Письма в ЖЭТФ* **66**, 771 (1997).
7. Б. П. Антонюк, В. Б. Антонюк, *УФН* **171**, 61 (2001).
8. Э. М. Баскин, М. В. Энтин, *Письма в ЖЭТФ* **48**, 554 (1988).
9. В. Б. Сулимов, *ЖЭТФ* **101**, 1749 (1992).
10. E. M. Baskin and M. V. Entin, in *Proc. of an Intern. Workshop held in Chicago 19-22 May, U.S.A.*, Kluwer Academic Publishers, London, 1998, p.191.
11. В. П. Antonyuk, N. N. Novikova, N. V. Didenko, and O. A. Aktsipetrov, *Phys. Lett.* **A287**, 161 (2001).
12. B. Valk, E. M. Kim, and M. M. Salour, *Appl. Phys. Lett.* **51**, 722 (1987).