Письма в ЖЭТФ, том 105, вып. 3, с. 142 – 147 © 2017 г. 10 февраля

Фотоиндуцированные решетки в сегнетоэлектрическом кристалле $Sn_2P_2S_6$ с зависящим от интенсивности оптической накачки периодом

П. А. Прудковский[+1)], *К. А. Брехов*[*], *К. А. Гришунин*[*], *К. А. Кузнецов*[+], *Е. Д. Мишина*[*], *М. С. Фокин*[+], *Г. Х. Китаева*[+]

[+]*Физический факультет, МГУ им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия*

[*]*Московский технологический университет (МИРЭА), 119434 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 18 июля 2016 г.

После переработки 14 декабря 2016 г.

Обнаружено рассеяние света в форме кольцевых структур, возникающее в кристаллах $Sn_2P_2S_6$ при распространении излучения мощной лазерной накачки вдоль кристаллографической оси b. Проходящее через кристалл излучение полностью рассеивается в конус, угол раствора которого растет с увеличением мощности накачки и обратимо уменьшается при ее снижении. Наблюдаемый эффект может быть объяснен спонтанным ростом амплитуды фотоиндуцированных объемных дифракционных решеток и рассеянием на них света в направлениях, в которых фазовые набеги фоторефрактивной и дифракционной природы взаимно компенсируют друг друга. Сходный тип рассеяния наблюдался ранее в других фоторефрактивных кристаллах, однако возникновение решеток с периодом, легко варьируемым изменением мощности накачки, демонстрируется впервые.

DOI: 10.7868/S0370274X17030031

Когда при волновом смешении в нелинейной среде возникает излучение, не являющееся результатом сложения или вычитания волновых векторов мод накачки, это всегда вызывает интерес, и, как правило, указывает на развитие некой неустойчивости в среде. В приложении к фоторефрактивным средам интерес возрастает, потому что рождение новых мод света сопровождается записью в среде объемных дифракционных решеток. Хорошо известно, что в фоторефрактивных кристаллах возможен спонтанный рост шумовых решеток, который приводит к развитию так называемого фотоиндуцированного рассеяния света (ФИРС) – рассеяния света в широкий конус света, сопровождающегося помутнением кристалла в месте прохождения накачки (optical damage) [1–6]. Концы волновых векторов шумовых решеток при этом лежат на некоторой сфере, т.е. их множество является двумерным. Обычно наибольшую амплитуду имеют решетки с малыми волновыми векторами, почти перпендикулярными волновому вектору накачки. В случае выполнения четырехволнового синхронизма возможно усиление одномерного подмножества решеток, рассеяние на которых проявляется в виде узкого конуса с углом раствора, определяемым условием синхронизма. Этот эффект был назван параметрическим рассеянием голографического типа (ПРГТ) [7–9].

Меньше известен более нетривиальный эффект – в поле двух встречных пучков накачки может происходить усиление решеток, волновой вектор которых почти параллелен волновым векторам накачки. Это явление было обнаружено как в средах с керровской нелинейностью [10], так и в фоторефрактивных кристаллах ниобата лития [11, 12], а позже – в кристаллах $KNbO_3$ [13, 14] и $BaTiO_3$ [15]. В этом случае речь идет о неустойчивости, приводящей к росту одномерного множества объемных решеток, соответствующих рассеянию света в виде узкого конуса под углом, для которого компенсируются фазовые набеги дифракционной и нелинейной природы [16]. Иногда может также происходить усиление трех решеток, чьи поперечные компоненты волновых векторов образуют правильный треугольник, проявляющееся в рассеянии в виде точечных гексагональных структур [13–15, 17]. Наблюдение конической неустойчивости возможно и в схемах с одним пучком накачки [11–14], если встречный пучок возникает в результате отражения падающего излучения от дальней грани кристалла и усиливается за счет энергообмена с прямым пучком накачки [18]. Эффект в любом слу-

[1)]e-mal: vysogota@gmail.com

чае является пороговым по интенсивности накачки, но аналитическое решение для порога неустойчивости [16, 17] может быть получено только для равных интенсивностей пучков накачки или для идеального отражения на задней грани кристалла и не описывает общего случая с произвольным соотношением между интенсивностями встречных пучков.

Данная работа посвящена наблюдению конической неустойчивости в схеме с одним пучком накачки в еще одном кристалле с фоторефрактивными свойствами – в $Sn_2P_2S_6$ (SPS). Причем обнаруженное нами рассеяние обладает особенностью, не наблюдавшейся ранее: угол конуса рассеяния существенно зависит от интенсивности накачки и может варьироваться простым изменением мощности падающего излучения. Второй характерной особенностью наблюдаемого эффекта является возможность полной перекачки в конусы рассеяния энергии прошедшего в кристалл излучения.

Кристалл SPS характерен весьма интересным сочетанием физических свойств, в частности, достаточно эффективным и относительно быстрым фоторефрактивным откликом: в ряде экспериментов создание стационарных фоторефрактивных решеток происходило за времена порядка нескольких миллисекунд [19]. При комнатной температуре это сегнетоэлектрик-полупроводник (ширина запрещенной зоны 2.35 эВ [20]), но при незначительном нагреве до температуры $\sim 64\,°$C переходит в параэлектрическую фазу [21]. Для переполяризации доменов требуется достаточно небольшое коэрцитивное поле ~ 750 В/см [22]. Оптические, нелинейно-оптические, кристаллографические, электронные, фоторефрактивные свойства, фононные, поляронные резонансы и дефекты в этом кристалле активно исследуются вплоть до настоящего времени [23–29].

Описание эксперимента. На рис. 1a изображена схема эксперимента, включающая титан-сапфировый лазер с длиной волны накачки, перестраиваемой в диапазоне 700–1000 нм, частотой повторения импульсов 80 МГц и длительностью импульсов ~100 фс. Направление вектора линейной поляризации накачки варьировалось с помощью полуволновой пластины. Лазерное излучение фокусировалось на кристалл толщиной около 0.5 мм с помощью линзы с фокусным расстоянием 10 см. Прошедшее через кристалл излучение попадало на экран, расположенный на расстоянии 25 см от образца, и его изображение регистрировалось на фотокамеру. Для наблюдения пространственной структуры отраженного излучения перед кристаллом ставилась полупрозрачная стеклянная

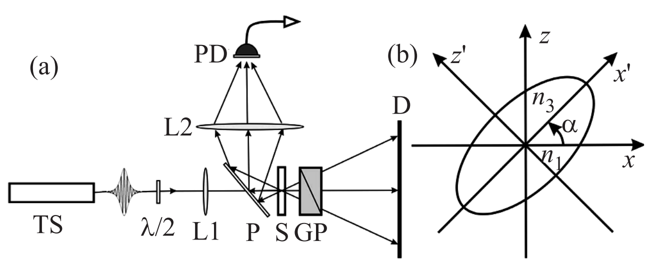

Рис. 1. (a) – Схема экспериментальной установки: TS — титан-сапфировый лазер, L – линзы, GP – призма Глана, D – экран, PD – фотодетектор, P – стеклянная пластинка, S – кристалл SPS. (b) – Кристаллографические оси кристалла SPS (ось Y направлена перпендикулярно плоскости рисунка) и эллипс показателей преломления в плоскости XZ

пластинка, отводящая часть отраженного излучения на второй экран, расположенный сбоку. Для отбора прошедшего через кристалл излучения по поляризации использовалась призма Глана. Входная и выходная грани кристалла были ориентированы перпендикулярно оси b элементарной ячейки кристалла, имеющей при комнатной температуре моноклинную точечную группу симметрии m. На рис. 1b отмечены кристаллографические оси SPS: взаимно-ортогональные оси X и Z лежат в плоскости входной и выходной грани, ось Y направлена вдоль нормали к входной грани. Известно, что кристалл SPS является оптически двуосным, причем одна из осей индикатрисы показателей преломления совпадает с осью Y, а две другие оси X', Z' лежат в плоскости $\langle 010 \rangle$ и развернуты относительно кристаллографических осей Z, X на некоторый угол (α на рис. 1b), зависящий от температуры и длины волны излучения. Согласно [30], при комнатной температуре и в актуальном для наших измерений диапазоне длин волн накачек 700–1000 нм угол α меняется в небольших пределах 44–48°.

При малых мощностях падающего лазерного излучения, не превышающих 60 мВт по средней мощности и, соответственно, $I_{\text{p}} = 180$ мВт/см^2 по пиковой интенсивности, существенных искажений пространственной структуры прошедшего и отраженного луча нами не наблюдалось. Однако при дальнейшем росте мощности накачки на обоих экранах, фиксирующих структуру прошедшего и отраженного излучения, появлялись кольца, а след от прямого прохождения луча накачки на экране за кристаллом постепенно полностью исчезал. Отметим, что возникновение кольцевой структуры, т.е. развитие конической неустойчивости, наблюдалось при падении накачки на пластину кристалла только с одной двух возмож-

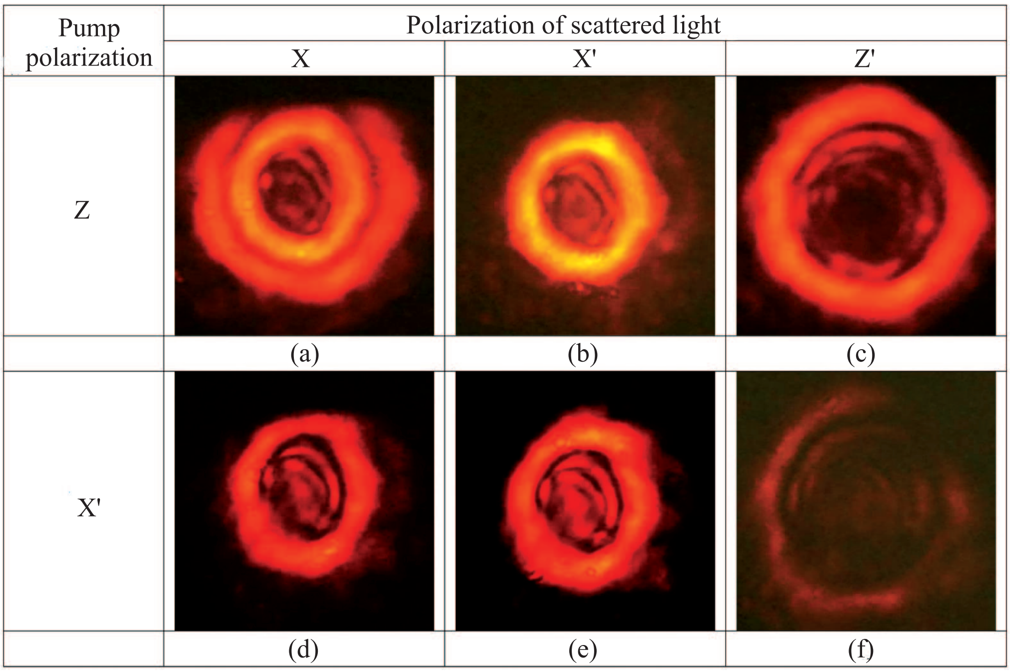

Рис. 2. (Цветной онлайн) Изображения рассеянного излучения, возникшего под действием накачки мощностью 110 мВт с длиной волны 700 нм, поляризованной вдоль кристаллографической оси Z (a–c) и оси X' оптической индикатрисы (d–f). Прошедшее излучение поляризовано вдоль кристаллографической оси X (a,d), вдоль оси X' оптической индикатрисы (b, e), вдоль оси Z' оптической индикатрисы (c, f)

ных сторон – при развороте образца на 180° никакого кольцевого рассеяния не наблюдалось. Это объясняется необходимостью возникновения встречного пучка света для развития неустойчивости: направление энергообмена между пучком накачки и встречным пучком света при развороте кристалла меняется на обратное [18]. В результате отраженный от задней грани кристалла пучок света при одной ориентации кристалла усиливается, а при противоположной – ослабляется.

На рис. 2 приведены изображения прошедшего через кристалл лазерного излучения с длиной волны 700 нм и фиксированной средней мощностью 110 мВт. Изображения на рис. 2a–c соответствуют поляризации падающего излучения вдоль кристаллографической оси кристалла Z, на рис. 2d–f вектор поляризации накачки той же мощности ориентирован почти параллельно одной из двух взаимно-перпендикулярных осей индикатрисы кристалла. Видно, что изображения прошедшего излучения состоят из 2-х концентрических колец, причем их поляризации взаимно ортогональны и соответствуют главным направлениям оптической индикатрисы: внутреннее кольцо на всех фотографиях поляризовано вдоль оси X', а внешнее – вдоль Z'. Пока мощность накачки остается постоянной, направление ее поляризации сказывается только на соотношении интенсивностей двух колец. Используя данные [30] о дисперсии главных значений показателя преломления кристалла, несложно показать, что раздвоение колец взаимно-ортогональной поляризации снаружи кристалла связано с преломлением волн на выходной поверхности, внутри же кристалла – это одно и то же кольцо.

Наиболее интересной особенностью наблюдаемой кольцевой структуры является прямая связь угла раствора конуса рассеяния θ с мощностью падающего излучения (рис. 3). Начиная с пороговой интенсивности и вплоть до достаточно больших значений мощности, радиус колец, наблюдаемых в прошедшем и отраженном свете, монотонно растет с ростом мощности. Время установления новой картины рассеяния после изменения мощности накачки варьировалось в пределах 0.1−1 с. На рис. 4 приведены экспериментальные зависимости угла раствора конуса рассеяния θ от интенсивности падающего на кристалл излучения, измеренные для различных длин волн накачки. Каждая из зависимостей на графике содержит участок, на котором угол рассеяния увеличивается с ростом интенсивности накачки, причем наклон зависимости тем больше, чем меньше длина волны накачки. Однако при достижении достаточно боль-

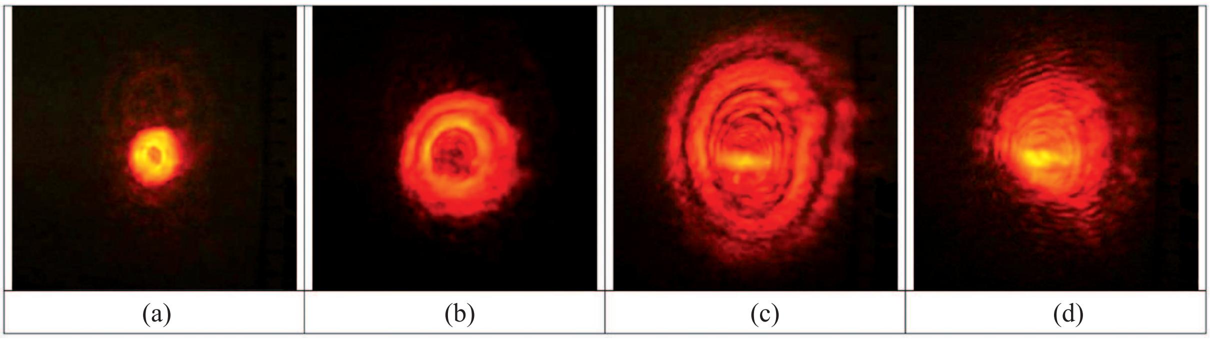

Рис. 3. (Цветной онлайн) Изменение кольцевых структур в рассеянном свете с ростом мощности накачки: (a) – 89 мВт, (b) – 113 мВт, (c) – 129 мВт, (d) –150 мВт

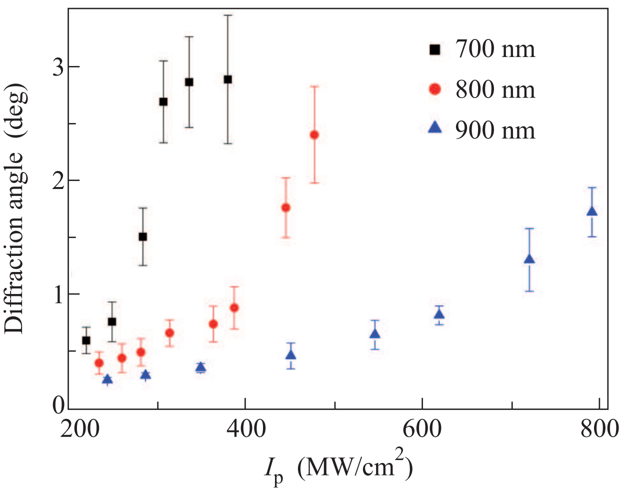

Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость угла конуса рассеяния от интенсивности накачки с различными длинами волн

ших углов их рост прекращался, переход к этому режиму виден на рис. 4 для самой резкой зависимости, соответствующей длине волны накачки 700 нм. На этом участке наблюдалась иная картина установления стационарного распределения мощности прошедшего излучения: на временах, меньших или порядка 0.4 с, происходил рост радиуса кольца, а потом – резкий спад за время, меньшее 0.1 с. При некоторых значениях мощности на этой стадии в более протяженных образцах с толщиной ~ 3 мм наблюдались непрерывные пульсации радиусов колец с периодом порядка нескольких десятых долей секунд. В работе [11] сходное нестационарное поведение конического рассеяния света трактовалось как переход в автоволновой режим. Действительно, большая инерционность фоторефракции в принципе может приводить к автоволновым процессам, существенно меняющим динамику рассеяния [31]. Впрочем, другой причиной такого нестационарного поведения колец могло бы быть нагревание кристалла при высоких значениях мощности накачки, означающее приближение к точке фазового перехода. Дальнейшее увеличение мощности накачки приводило к распаду колец на мелкомасштабные структуры и появлению размытого пространственно-неоднородного пятна вместо колец на экране (см. рис. 3d). Наконец, при мощностях от 175 мВт и выше (для накачки с длиной волны 700 нм) сложная картина рассеяния полностью исчезала, и прошедшее излучение формировало пятно того же диаметра, что и падающая накачка.

Обсуждение результатов. Наблюдаемое нами рассеяние в форме кольцевых структур в кристаллах SPS сходно с ранее наблюдавшимся рассеянием в других фоторефрактивных кристаллах [11–15], однако имеет два важных отличия. Во-первых, во всех прежних работах интенсивность кольцевого рассеяния составляла малую долю от интенсивности накачки, тогда как в нашем случае луч накачки на выходе из кристалла полностью исчезает, т.е. накачка полностью перекачивается в кольца рассеяния. Во-вторых, в нашем случае наблюдается зависимость радиуса колец (т.е. поперечной компоненты волнового вектора $q_\perp$ записанных в кристалле объемных решеток) от интенсивности накачки, тогда как во всех прежних работах радиус стационарных колец рассеяния был неизменен.

Как уже говорилось, в случае равной интенсивности встречных пучков для порога конической неустойчивости может быть получено аналитическое выражение [16, 17]. В кристалле SPS коэффициент отражения по интенсивности от задней грани кристалла составляет примерно 25 %, поэтому встречный пучок накачки заведомо слабее прямого. В случае произвольного соотношения между интенсивностями пучков накачки порог неустойчивости можно получить путем численного решения уравнений, аналогичных полученным в работе [16]. Отметим, что речь идет о линейном анализе взаимодействия слабых мод рассеянного света в поле сильных неистощимых встречных пучков накачки. На рис. 5 показана полученная таким образом величина инкремента нарастания конической неустойчивости в координатах $(q_{\perp}, \eta L I_{\mathrm{p}})$, где I_{p} – интенсивность накачки, L – длина кристалла, а параметр η описывает эффективность энергообмена между оптическими модами в кристалле за счет фоторефракции. Видно, что область неустойчивости с самой малой компонентой $q_{\perp}$ возникает первой, а инкремент нарастания в ней при дальнейшем возрастании интенсивности остается самым большим. Поэтому неудивительно, что в работах [11–15] наблюдались кольцевые структуры, соответствующие неизменной минимально возможной поперечной компоненте волнового вектора. Однако, если накачка почти полностью перекачивается в кольцевые структуры, как это происходило в нашем случае, то сами кольцевые структуры с минимальным $q_{\perp}$ могут начинать работать как вторичные накачки для рассеяния с большими углами. По-видимому, возрастание радиуса колец с увеличением интенсивности накачки объясняется нелинейным взаимодействием мод с различными поперечными компонентами волнового вектора. К сожалению, нелинейный анализ взаимодействия мод рассеяния, соответствующих разным областям неустойчивости на рис. 5, с учетом истощения накачки слишком сложен и выходит за рамки данного исследования.

Обычно выделяют так называемый локальный и нелокальный фоторефрактивный отклики кристалла. Локальный отклик связан с формированием объемных решеток, не сдвинутых относительно интерференционной картины излучения, приводящих только к фазовому набегу в рассеянном свете. Нелокальный отклик соответствует решеткам, сдвинутым на половину длины волны относительно интерференционной картины, он приводит к перекачке энергии между модами излучения. Рис. 5 получен для приблизительно равных величин локального и нелокального отклика кристалла, при этом порог конической неустойчивости $\eta L I_{\mathrm{p}} \approx 4.5$. Однако известно, что в кристаллах SPS преобладает диффузионный механизм фоторефракции, приводящий к нелокальному отклику. Локальный отклик в этих кристаллах, связанный с фотогальваническим эффектом, на несколько порядков слабее [32]. Численный анализ показывает, что порог неустойчивости при этом будет на те же несколько порядков выше, т.е. следует ожидать его на уровне 10^3–10^5.

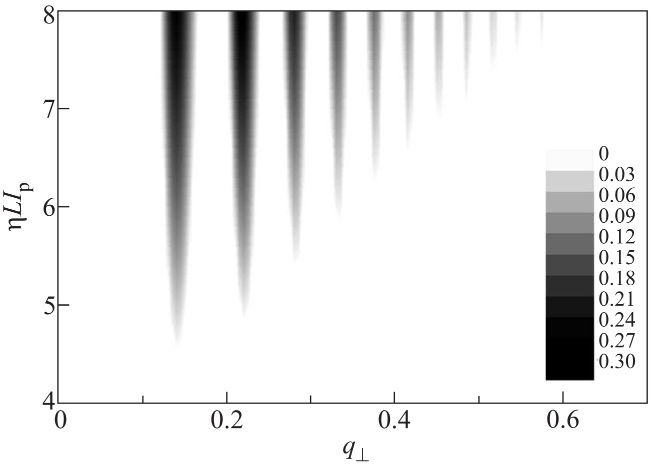

Рис. 5. Порог конической неустойчивости и величина инкремента нарастания решеток с поперечным волновым вектором $q_{\perp}$, полученные при помощи численного интегрирования, в координатах $(q_{\perp}, \eta L I_{\mathrm{p}})$ (в условных единицах)

Оценим величину $\eta L I_{\mathrm{p}}$ в наших экспериментальных условиях. Параметр η, характеризующий фоторефрактивный отклик диффузионной природы, можно записать в виде $\eta = renD/(\lambda^2 \sigma I_s)$ [33], где r – компонента электрооптического тензора, λ – длина волны накачки, n – концентрация носителей заряда, D – их коэффициент диффузии, σ – проводимость кристалла, а I_{s} – параметр, описывающий эффекты насыщения при фотовозбуждении носителей. Учитывая, что коэффициент диффузии $D \sim kT\mu/e$ и проводимость $\sigma \sim en\mu$, где μ – подвижность носителей, получаем $\eta L I_{\mathrm{p}} \sim (rkT/(\lambda e))(L/\lambda)(I_{\mathrm{p}}/I_{\mathrm{s}})$. Электрооптический коэффициент в кристаллах SPS имеет порядок $r \sim 100\,\text{пм/В}$, а оценка для параметра насыщения $I_{\mathrm{s}} \sim 7\,\text{Вт/см}^2$ [34]. Отсюда для наших экспериментальных условий при пороговом значении интенсивности $I_{\mathrm{p}} = 180\,\text{мВт/см}^2$ получаем $\eta L I_{\mathrm{p}} \sim 3 \cdot 10^4$, что качественно соответствует нашим теоретическим оценкам.

Аналогично можно оценить электростатическое поле разделенных зарядов $\mathcal{E} \sim (kT/(\lambda e))(I_{\mathrm{p}}/I_{\mathrm{s}}) \approx$ $\approx 5 \cdot 10^9\,\text{В/см}$. Видно, что оно на много порядков больше коэрцитивного поля в SPS. Это означает, что обнаруженная нами коническая неустойчивость в кристаллах SPS, приводящая к записи объемных дифракционных решеток с поперечной компонентой волнового вектора, зависящей от интенсивности накачки, должна сопровождаться процессами переполяризации кристалла и формирования структур сегнетоэлектрических доменов. Изучение образующихся доменных структур и возможности их перестройки путем простого изменения мощности оптической накачки может стать чрезвычайно интересным продолжением данной работы.

Авторы выражают благодарность Ю.М. Высочанскому за предоставление образцов, А.М. Бурякову и В.Р. Билык за помощь в проведении эксперимента и А.А.Ежову за полезные консультации. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (грант 14.Z50.31.0034) и грантов РФФИ 14-22-02091, 16-02-00258, госзадание 3.7500.2017/П220.

---

1. W. Phillips, J. J. Amodei, and D. L. Staebler, RCA Rev. **33**, 94 (1972).
2. I. F. Kanaev, V. K. Malinovsky, and B. I. Sturman, Opt. Comm. **34**, 95 (1980).
3. В. В. Воронов, И. Р. Дорош, Ю. С. Кузьминов, Н. В. Ткаченко, Квантовая электроника **7**, 2313 (1980).
4. P. A. Augustov, M. Reinfelde, and K. K. Shvarts, Appl. Phys. A **29**, 169 (1982).
5. Э. М. Авакян, К. Т. Белабаев, С. Г. Одулов, ФТТ **25**, 3274 (1983).
6. F. Guibaly and L. Yong, Ferroelectrics **46**, 201 (1983).
7. S. Odoulov, K. Belabaev, and I. Kiseleva, Opt. Lett. **10**, 31 (1985).
8. И. Н. Киселева, В. В. Обуховский, С. Г. Одулов, ФТТ **28**, 2975 (1986).
9. D. A. Temple and C. Warde, JOSA B **3**, 337 (1986).
10. J. Pender and L. Hesselink, J. Opt. Soc. Am. B **7**, 1361 (1990).
11. В. В. Обуховский, А. В. Стоянов, Квантовая электроника **12**, 563 (1985).
12. S.-M. Liu, G.-Y. Zhang, J.-L. Wang, X.-Y. Ma, and Y.-F. Fu, Optics Comm. **70**, 185 (1989).
13. T. Honda, Optics Lett. **18**, 598 (1993).
14. N. V. Kukhtarev, T. V. Kukhtareva, H. J. Caulfield, P. P. Banerjee, H.-L. Yu, and L. Hesselink, Opt. Eng. **34**, 2261 (1995).
15. T. Honda and H. Matsumoto, Opt. Lett. **20**, 1755 (1995).
16. Б. И. Стурман, А. И. Черных, ЖЭТФ **111**, 1611 (1997).
17. П. М. Лушников, ЖЭТФ **113**, 1122 (1998).
18. И. Ф. Канаев, В. К. Малиновский, Б. И. Стурман, ЖЭТФ **74**, 1599 (1978).
19. S. G. Odoulov, A. N. Shumelyuk, U. Hellwig, R. A. Rupp, A. A. Grabar, and I. M. Stoyka, JOSA B **13**, 2352 (1996).
20. R. V. Gamernyk, Yu. P. Gnatenko, P. M. Bukivsij, P. A. Skubenko, and V. Yu. Slivka, J. Phys.: Cond. Matt. **18**, 5323 (2006).
21. R. M. Yevych and Yu. M. Vysochanskii, Cond. Mat. Phys. **11**, 417 (2008).
22. C. D. Carpentier and R. Nitsche, Materials Research Bulletin **9**, 1097 (1974).
23. M. I. Gurzan, A. P. Buturlakin, V. S. Gerasimenko, N. F. Korde, and V. Y. Slivka, Sov. Phys. Solid State **19**, 1794 (1977).
24. A. Anema, A. Grabar, and T. Rasing, Ferroelectrics **183**, 181 (1996).
25. A. A. Grabar, I. V. Kedyk, M. I. Gurzan, I. M. Stoika, A. A. Molnar, AND Y. M. Vysochanskii, Opt. Comm. **188**, 187 (2001).
26. D. Haertle, G. Caimi, A. Haldi, G. Montemezzani, P. Gunter, A. A. Grabar, I. M. Stoika, and Y. M. Vysochanskii, Opt. Comm. **215**, 333 (2003).
27. M. Imlau, V. Dieckmann, H. Badorreck, and A. Shumelyuk, Opt. Materials Express **1**, 953 (2011).
28. Yu. Vysochanskii, K. Glukhov, K. Fedyo, and R. Yevych, Ferroelectrics **414**, 30 (2011).
29. К. А. Гришунин, К. А. Брехов, О. В. Самотохин, Российский технологический журнал, **2**(7), 134 (2015).
30. D. Haertle, A. Guarino, J. Hajfler, G. Montemezzani, and P. Günter, Opt. Express **13**, 2047 (2005).
31. П. А. Прудковский, Квантовая Электроника **41**, 30 (2011).
32. Y. W. Cho, S. K. Choi, and Yu. M. Vysochanskii, J. Mater. Res. **16**, 3317 (2001).
33. В. В. Обуховский, А. В. Стоянов, Квантовая электроника **12**, 563 (1985).
34. A. A. Grabar, M. Jazbinsek, A. N. Shumelyuk, Y. M. Vysochanskii, G. Montemezzani, and P. Gunter, in: Photorefractive materials and their applications 2, Ch. 10, ed. by P. Gunter, J.-P. Huignard, Springer Series in Optical Sciences, Berlin (2007), v. 114, p. 640.