

РЕЛАКСАЦИЯ ОПТИЧЕСКОЙ ПЛОТНОСТИ СТЕКЛА, ПРОМОДУЛИРОВАННОЙ БИХРОМАТИЧЕСКИМ ИЗЛУЧЕНИЕМ

М.К.Балакирев¹⁾, Л.И.Вострикова, В.А.Смирнов, М.В.Энтин

*Институт физики полупроводников СО РАН
630090 Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 3 января 1996 г.

Воздействие двух разночастотных когерентных световых лучей с частотами ω и 2ω на оксидное стекло приводит к накоплению в нем пространственных решеток показателя преломления. Исследована кинетика записи и релаксации решеток. Освещение одним лучом или фоновая подсветка образца приводят к ускорению релаксации, что связывается со значительной фотопроводимостью стекла. Установлено, что при непрерывном освещении решетки лучом основной частоты дифракция выходит на остаточный самоподдерживающийся уровень. Результаты анализируются на основе модели, включающей когерентный фотогальванический ток, накопление под его воздействием решетки неоднородных зарядов и обратное воздействие статического поля через электрооптические эффекты на распространение лучей. Показано существование в стекле световой неустойчивости фотоиндуцированных решеток показателя преломления.

PACS 72.40.+w; 42.65.Hw

Известно, что освещение изотропной среды многочастотным светом с отличными от нуля нечетными корреляторами поля может порождать обратимое изменение оптических параметров материала. Экспериментально это проявляется как возникновение в среде эффективной поляризуемости $\chi^{(2)}$ второго порядка и генерации второй гармоники после длительного освещения [1–2], либо как самодифракция света и образование долгоживущих решеток показателя преломления [3]. Природа эффекта предположительно [4] связана с когерентным фотогальваническим эффектом (КФГЭ) [5–8], а именно, возникающий при КФГЭ ток в неоднородной среде или при неоднородности освещения порождает стационарное электрическое поле E вследствие разделения зарядов. В наименьших порядках по полю это приводит к появлению в centrosymmetric средах эффективной поляризуемости второго порядка $\chi^{(2)} \sim \chi^{(3)}E$ и изменению показателя преломления $\Delta n \sim \chi^{(3)}E^2$ ($\chi^{(3)}$ – поляризуемость третьего порядка). В последнем случае при интерференции двух лучей с волновыми векторами k_1 и k_2 возникает пространственная решетка Δn с волновым вектором $q = 2(2k_1 - k_2)$. В рамках таких представлений возникновение и релаксация решеток связаны с накоплением и релаксацией объемного заряда в стекле.

В настоящем сообщении приводятся результаты исследования кинетики формирования и релаксации изменения показателя преломления, индуцированного взаимнокогерентным двухчастотным излучением.

В качестве объекта исследования мы выбрали широко распространенное в оптических приложениях оксидное стекло марки К-8 (промышленная пластина ПМ-40). Образец одновременно освещался пересекающимися лучами первой и второй гармоник неодимового лазера (длины волн – $\lambda_1 = 1.079$ мкм и $\lambda_2 =$

¹⁾e-mail: balakmk@isph.nsk.su

0.539 мкм, соответственно), сфокусированными так, чтобы точка пересечения осей находилась вблизи центров перетяжек лучей. Поляризации лучей e_1 и e_2 были параллельны плоскости схождения лучей с точностью 0.5° . Угол между осями лучей $\theta_b = 4.8^\circ$ выбирался таким, чтобы для луча первой гармоники выполнялись условия Брегговской дифракции на фотоиндуцированной решетке показателя преломления [3]. Импульсная энергия дифрагированного света основной частоты, пропорциональная интегральной по сечению луча интенсивности I_d , регистрировалась фотоумножителем в дальней зоне. Сигналы с выхода фотоумножителя преобразовывались стробоскопическим преобразователем и вводились в память ЭВМ. Чувствительность системы по всему каналу составляла $\approx 10^{-10}$ Дж/имп. По второму каналу в память ЭВМ синхронно вводились импульсы регистрации интенсивности лазерного излучения для контроля излучения лазерного источника во времени. При получении временных зависимостей интенсивностей дифракции и лазерного излучения проводилось усреднение по 10–50 импульсам. Нестабильность лазерного излучения не превышала 5–7% в течение эксперимента. В работе использовалось импульсное излучение с длительностью 15 нс и частотой повторения 12.5 Гц, пиковая интенсивность первой гармоники в фокальной плоскости равнялась $\approx 10^9$ Вт/см² при эффективном диаметре фокуса ≈ 260 мкм. Энергия световых импульсов второй гармоники составляла $\sim 10 - 12\%$ от энергии основных.

Эксперимент состоял из двух этапов. На первом этапе (запись решетки) образец освещался обоими лучами одновременно. На втором этапе (считывание релаксирующей решетки) падающий на образец луч второй гармоники перекрывался. На этом этапе использовались два режима измерения: непрерывный и дискретный. В первом случае образец освещался лучом основной гармоники непрерывно. Во втором режиме, с целью уменьшения воздействия света, образец освещался в течение коротких промежутков времени 5–10 с с интервалами в 3–10 мин, и процесс интерпретировался как "темновая" релаксация. Мы проводили по две серии таких экспериментов в нескольких областях образца. В первой серии образец был максимально изолирован от фоновой засветки. Во второй серии образец не изолировался и находился при комнатном освещении. Во всех исследованных областях образца наблюдалась хорошая воспроизводимость эффектов.

Типичные результаты измерений представлены на рис.1–3. На рис.1 приведена зависимость $I_d(t)$ при записи для изолированного образца. На рис.2 и рис.3 представлены релаксационные зависимости $I_d(t)$ при непрерывном считывании (1) и при темновой релаксации (2) для неизолированного от подсветки и изолированного образцов, соответственно. Все величины нормированы на свои максимальные значения.

Сформулируем кратко полученные результаты.

1. Временные зависимости $I_d(t)$ при записи в затемненном и незатемненном образцах практически неотличимы.

2. Существует значительное различие скоростей релаксации в затемненном и открытом образцах. В затемненном образце релаксация медленнее (приблизительно в 5 раз), чем в незатемненном. Специально поставленный эксперимент показал, что решетка, освещаемая только лучом второй гармоники, стирается примерно за полторы минуты, то есть почти на два порядка быстрее, чем при темновой релаксации. Иными словами, индуцированные решетки обладают ярко выраженной фоточувствительностью.

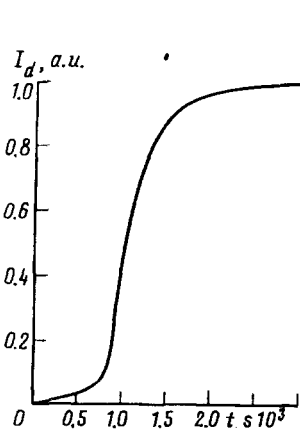


Рис.1

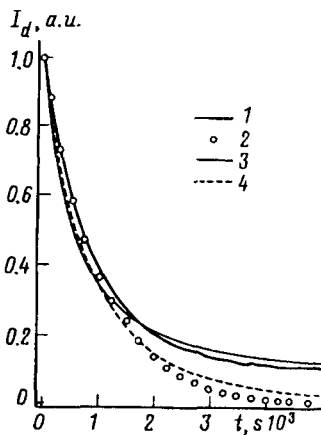


Рис.2

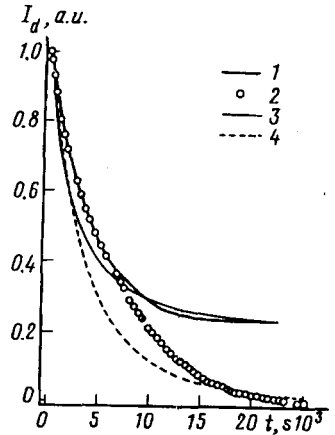


Рис.3

Рис.2. Релаксация интенсивности дифракции в неизолированном образце: 1 и 2 – эксперимент; 3 и 4 – теория; 1, 3 – непрерывное считывание, 2, 4 – темновая релаксация

Рис.3. Релаксация интенсивности дифракции в изолированном образце. Значения кривых и точек то же, что и на рис.2

3. Как в затемненном, так и в незатемненном образцах при непрерывном считывании решетки лучом основной частоты интегральная интенсивность дифрагированного луча релаксирует к остаточному значению $I_{d,min}$, которое сохраняется неопределенно долго (то есть в течение эксперимента). При этом остаточный уровень в затемненном образце в ~ 2 раза больше, чем в незатемненном и составляет 22% от максимального значения. Это означает, что существует специфическая "подпитка" дифракционной решетки когерентным монохроматическим светом.

Обсудим полученные зависимости. Мы будем исходить из гипотезы, что Δn -решетки порождены пространственными решетками статического знакопеременного поля E , возникающего вследствие разделения и накопления заряда КФГ-током. Простая максвелловская модель релаксации объемного заряда не может объяснить наблюдаемые процессы и, в особенности, остаточную дифракцию, даже при учете фотопроводимости.

Можно было бы предположить, что остаточная дифракция (ОД) обусловлена решеткой упруго-пластических деформаций, накапливающихся в стекле вследствие электрострикции. Однако отсутствие ОД при темновой релаксации (кривые 2 на рис.2,3) опровергает такое предположение. Другая причина ОД может быть связана с поддержанием образовавшегося распределения заряда за счет абсолютной отрицательной фотопроводимости [9,10] при непрерывном освещении образца монохроматическим светом в процессе считывания.

Нам представляется более вероятным механизм, обусловленный неустойчивостью статического поля в монохроматическом свете вследствие КФГЭ. Такая неустойчивость может развиваться по схеме: синхронная генерация второй гармоники $E_{2,in}$ на затравочной решетке поля E ($\chi^{(2)} \sim \chi^{(3)}E$): $E_{2,in} \sim \chi^{(2)}E_1^2 \sim \chi^{(3)}E \cdot E_1^2$; \rightarrow возникновение "спонтанного" КФГ-тока $J_{in} \sim E_{2,in}E_1^2 \sim \chi^{(3)}E \cdot E_1^4$; \rightarrow усиление разделения зарядов, и рост поля E , пропорциональный самому полю. Подобный сценарий неустойчивости предложен в

[11] для объяснения фотоиндуцированной генерации второй гармоники в волонконных световодах (см. также [12]). Развивающаяся неустойчивость может ограничиваться сверху нелинейными механизмами, например, зависимостью проводимости от статического поля.

Если нелинейное затухание больше инкремента неустойчивости, то поле релаксирует к некоторому конечному значению. Таким образом, в процессе релаксации решетки в присутствии основной гармоники происходит генерация 2-ой гармоники и частичная подпитка решетки. При бихроматическом взаимнокогерентном освещении КФГ-ток складывается из токов J_{in} и J_{out} , пропорционального амплитуде $E_{2,out}$ поля внешней второй гармоники, так что J_{in} обуславливает инкремент E , а J_{out} является вынуждающим. Строго говоря, решетка не является гармонической и из-за нелинейности не сохраняет свою форму в процессе релаксации. Тем не менее, можно полагать, что при неустойчивости она сохраняет начальный период, поскольку максимальное преобразование во вторую гармонику достигается в условиях фазового синхронизма: $k_{2,in} = 2k_1 - q/2$. Соответственно, волновой вектор порождаемой током J_{in} решетки поля совпадает с вектором $q/2$ затравочной решетки: $q_{in}/2 = 2k_1 - k_{2,in} = q/2$.

Основные черты релаксации поля можно понять, используя простейшую модель, в которой нелинейное уравнение релаксации содержат только пространственную моду с начальным периодом:

$$\frac{dE}{dt} = -\frac{4\pi}{\epsilon}(\sigma_{ef}E + \gamma E^3); \quad \sigma_{ef} = \sigma_0 + \sigma_l - \sigma_e. \quad (1)$$

Здесь E – амплитуда решетки, σ_0 – темновая проводимость, σ_l – фотопроводимость. Величина σ_e , пропорциональная $\chi^{(3)}E_1^4$, учитывает КФГЭ и ответственна за оптическую неустойчивость поля, γ – коэффициент нелинейной статической проводимости, зависящий в общем случае от интенсивности освещения. Отрицательное σ_{ef} соответствует неустойчивости (нарастанию) поля, положительное – обычной релаксации.

Решение уравнения имеет вид

$$E^2 = E_0^2[(E_0^2/E^2(0) + s) \exp(2st/\tau_{ef}) - s]^{-1}; \quad E(0) = E(t=0). \quad (2)$$

Здесь обозначено $\tau_{ef} = 4\pi |\sigma_{ef}| / \epsilon$, $s = \text{sign} \sigma_{ef}$, $E_0^2 = \gamma \tau_{ef}$. Из решения следует, что при $s < 0$ поле растет или убывает в зависимости от знака $|E(0)| - |E_0|$, стремясь к стационарному значению E_0 . Для $s > 0$ поле релаксирует к нулю при любых начальных значениях. Изменение показателя преломления пропорционально E^2 , а интенсивность дифракции $\sim (\Delta n)^2 \sim E^4$.

Для описания процессов накопления правую часть (1) следует дополнить членом, соответствующим КФГ-току, пропорциональному $E_{2,out}$. При этом нужно учесть вклад внешней второй гармоники в фотопроводимость. Поскольку такой вклад весьма велик (см. п.2), то он является определяющим в τ_{ef} , и слабая фоновая засветка образца не должна заметно влиять на процесс записи решетки. Что и наблюдается в эксперименте.

На рис.2–3 представлены для наглядности зависимости интенсивности дифракции при непрерывном считывании вместе с зависимостями $E(t)^4$, полученными из (2) при $E_0^4/E(0)^4 = I_{d,min}/I_d(0)$ и подобранных τ_{ef} . Как видно, существует различие – экспериментальные зависимости релаксируют медленнее теоретических. Такое отличие может быть обусловлено двумя причинами.

Первая – зависимость γ от интенсивности освещения. Тогда при темновой релаксации в затемненном образце γ/σ_{ef} относительно мало, и решетка должна релаксировать почти экспоненциально. При фоновой подсветке образца γ/σ_{ef} также остается малым из-за более сильного возрастания σ_{ef} по сравнению с γ .

Другая причина – сложный характер дифракции. Из-за различия огибающих падающего луча и решетки характер дифракции в различных областях пространства меняется от раман-наттовского (на периферии) к брегговскому (в центре) с различной зависимостью от $(\Delta n)^2$. Ограниченность поперечных размеров решетки приводит еще и к тому, что центральные участки с большей амплитудой поля релаксируют из-за нелинейности быстрее периферийных. Полная же интенсивность дифракции, усредненная по поперечному сечению решетки, релаксирует с некоторой средней скоростью, то есть медленнее, чем в модели с однородной решеткой.

Наконец, отличие теории и эксперимента может быть связано с перераспределением электронов по энергетическим состояниям и релаксацией самой фотопроводимости. Очевидно, рассмотренная нами простая модель не может вполне адекватно описать наблюдаемые явления. Однако она правильно отражает основные особенности происходящих в стекле процессов, связанных с самим существованием КФГЭ.

Авторы благодарны Российскому фонду фундаментальных исследований за поддержку работы (грант 93-02-15195).

-
1. R.H.Stolen and H.Tom, *Optics Lett.* **12**, 585 (1987).
 2. Б.Я.Зельдович, Ю.Е.Капицкий, В.М.Чуриков, *Письма в ЖЭТФ* **53**, 77 (1991).
 3. М.К.Балакирев, В.А.Смирнов, *Письма в ЖЭТФ* **61**, 537 (1995).
 4. Е.М.Дианов, П.Г.Казанский, Д.Ю.Степанов, *Квантовая электроника* **16**, 887 (1989).
 5. Н.Б.Баранова, Б.Я.Зельдович, *Письма в ЖЭТФ* **45**, 562 (1987).
 6. М.В.Энтин, *ФТП* **23**, 1066 (1987).
 7. Э.М.Баскин, М.В.Энтин, *Письма в ЖЭТФ* **48**, 554 (1988).
 8. В.Б.Сулимов, *ЖЭТФ* **101**, 1749 (1992).
 9. М.И.Дьяконов, *Письма в ЖЭТФ* **39**, 158 (1984).
 10. В.К.Малиновский, В.Н.Новиков, Б.И.Стурман, *Письма в ЖЭТФ* **41**, 285 (1985).
 11. Е.М.Дианов, П.Г.Казанский, Д.Ю.Степанов, *Квантовая электроника* **17**, 926 (1990).
 12. M.I.Dyakonov, A.S.Furman, *Comments Cond. Mat. Phys.* **16**, 19 (1992).