

СВЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ НЕУСТОЙЧИВОСТЬ В ОКСИДНОМ СТЕКЛЕ

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

Институт физики полупроводников СО РАН
630090, Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 28 октября 1997 г.

Пространственно-периодическая модуляция оптической анизотропии (МОА), индуцированная в оксидном стекле разночастотными (ω и 2ω) взаимнокогерентными лучами света, неустойчива при освещении монохроматическим светом с частотой ω . Возмущения с малыми амплитудами усиливаются, с большими – релаксируют. Независимо от начальной глубины, МОА выходит на один и тот же стационарный уровень, зависящий от интенсивности освещения. Усиление МОА сопровождается возникновением излучения второй гармоники, интенсивность которой нарастает во времени вплоть до выхода на стационарный уровень. Неустойчивость анизотропии связывается с вырожденным трехволновым взаимодействием и обратной связью, возникающей вследствие когерентного фотогальванического эффекта. Для объяснения стабилизации неустойчивости и образования стационарных периодических решеток показателя преломления предложена гипотеза, учитывающая обнаруженное гигантское возрастание (на три порядка) поглощения света в области МОА.

PACS: 42.65.Hw, 72.40.+w

В ряде работ последнего времени было установлено, что под действием монохроматического излучения оптически изотропная среда – стекло может обратимо понижать свою симметрию. В результате состояние системы стекло+свет оказывается неустойчивым. Изменение симметрии сопровождается перестройкой спектра светового потока и его пространственного распределения. Экспериментально это проявляется как спонтанное возникновение и усиление второй гармоники при длительном пропускании монохроматического света через световод [1, 2] либо как самоподдерживающаяся дифракция света в объемных образцах [3]. Считается [4, 5], что в основе неустойчивости лежит когерентный фотогальванический эффект (КФГЭ) [6–9] – возникновение стационарного тока при освещении среды двумя взаимнокогерентными источниками разных частот (ω и 2ω). В рамках такого представления неустойчивость и рост флуктуаций оптической анизотропии в изотропной среде при монохроматическом освещении могут быть связаны с усилением макроскопических флуктуаций электростатического поля.

В настоящей работе приводятся результаты прямого наблюдения неустойчивости фотоиндуцированной модуляции анизотропного показателя преломления в стекле и исследуются свойства такой неустойчивости.

Эксперименты проводились с оксидным стеклом и состояли в следующем. Вначале двумя взаимнокогерентными лучами основной и удвоенной частот импульсного неодимового лазера в стекле создавалось обратимое пространственно-периодическое изменение Δn показателя преломления – Δn -решетка [3, 10]. Такая решетка играла роль начального возмущения на следующем этапе эксперимента. Амплитуда начального возмущения варьировалась длительностью освещения стекла, а угол между

¹⁾ e-mail: balak@isp.nsc.ru

лучами выбирался так, чтобы Δn -решетка была ориентирована под углом Брегга к лучу основной частоты (основной луч). После создания начального возмущения луч удвоенной частоты перекрывался и исследовалась динамика эффективности дифракции основного луча $\eta_d = I_d/I_1$ в зависимости от амплитуды начального возмущения и величины I_1 (I_d и I_1 – пиковые мощности дифрагированного и падающего света). При такой постановке основной луч являлся тестирующим и одновременно выполнял роль "накачки". В другой серии экспериментов после записи начального возмущения исследовалась динамика излучения второй гармоники, возникающего из области решетки при освещении ее основным лучом, в зависимости от интенсивности основного луча и амплитуды начального возмущения.

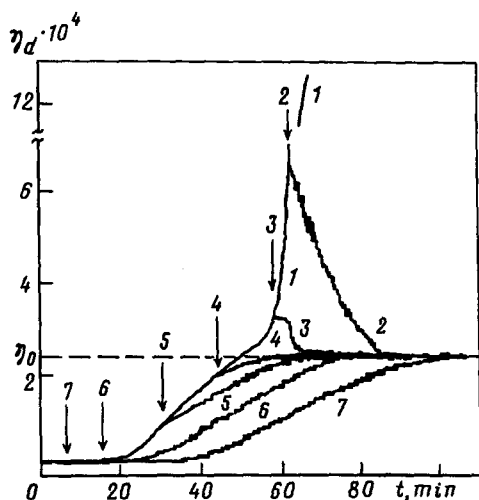


Рис.1. Эволюция дифракционной эффективности решеток с различными начальными амплитудами

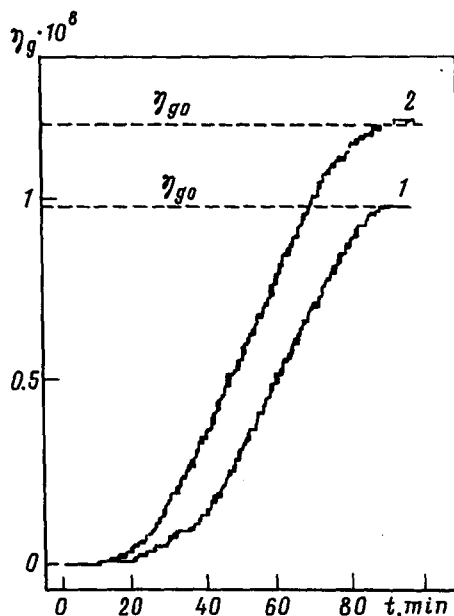


Рис.2. Эволюция эффективности ГВГ при разной интенсивности освещения : 1- I_1 , 2- $1.4I_1$

1. На рис.1 представлено типичное семейство кривых эволюции дифракционной эффективности при различных начальных возмущениях. Стрелками указаны моменты прекращения записи решеток и начала освещения их излучением только основной частоты. Кривая 1 характеризует зависимость эффективности дифракции на начальном возмущении от длительности его записи. Из рисунка видно, что возмущения с малыми амплитудами усиливаются, возмущения с большими амплитудами – релаксируют. Однако, независимо от начального значения, дифракционная эффективность решеток выходит на один и тот же стационарный уровень $\eta_d = \eta_0$. Исследование зависимости η_0 от интенсивности освещения показало, что стационарный уровень монотонно увеличивается с ростом I_1 и выходит на насыщение при достаточно больших значениях I_1 . В целом наблюдаемая динамика решеток имеет формальное сходство с эволюцией возмущений в активных нелинейных колебательных системах с устойчивым предельным циклом.

Таким образом, в системе существует световая неустойчивость фотоиндуцированных решеток показателя преломления, переводящая систему в устойчивое стационарное состояние, зависящее от интенсивности падающего света.

2. Усиление решеток сопровождается возникновением и ростом излучения второй гармоники из области решетки. Направление и поляризация этого излучения такие же, как у луча удвоенной частоты, использованного при создании начального возмущения. Рост эффективности генерации второй гармоники (ГВГ) $\eta_g = I_2/I_1$ (I_2 – пиковая мощность рождающейся второй гармоники) наблюдается вплоть до выхода на некоторый стационарный уровень η_{g0} (см.рис.2, где процесс показан для двух различных интенсивностей основного луча). Уровень η_{g0} увеличивается с ростом I_1 . Насыщение эффективности ГВГ и дифракционной эффективности достигается за одно и то же время, то есть наблюдается прямая корреляция между $\eta_g(t)$ и $\eta_d(t)$.

Если дифракционная эффективность начального возмущения сильно превосходит η_0 , то на начальной стадии релаксации решетки излучение второй гармоники в пределах чувствительности аппаратуры не регистрируется. Однако в области значений $\eta_d \leq 1.2\eta_0$ излучение возникает и резко усиливается с уменьшением амплитуды решетки, достигая максимума при $\eta_d = \eta_0$. Эффективность ГВГ при этом совпадает со стационарным уровнем η_{g0} . Корреляция эффективности ГВГ с относительной эффективностью дифракции представлена на рис.3. Таким образом, наблюдается прямая связь между усилением решеток и приращением эффективности ГВГ.

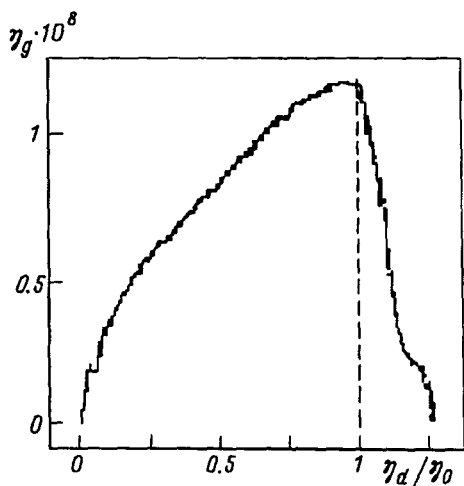


Рис.3

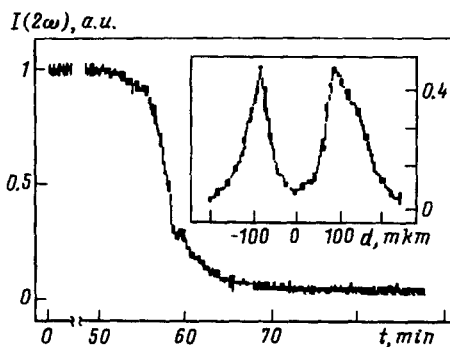


Рис.4 Ослабление интенсивности света удвоенной частоты

Обсудим результаты, исходя из того, что изменение оптических свойств стекла связано с возникновением в нем электростатического поля $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ вследствие КФГЭ. Возникновение оптической анизотропии в рамках простейшей модели описывается следующим образом. Двухчастотное световое поле $\mathbf{E}(\omega, 2\omega) = \mathbf{E}(\omega) + \mathbf{E}(2\omega)$ с

$$\mathbf{E}(\omega) = \mathbf{e}_1 E_1 \exp i(\mathbf{k}_1 \mathbf{r} - \omega t), \quad \mathbf{E}(2\omega) = \mathbf{e}_2 E_2 \exp i(\mathbf{k}_2 \mathbf{r} - 2\omega t) \quad (1)$$

создает в стекле пространственно-периодическую решетку КФГ-тока $\mathbf{J}(\mathbf{r})$:

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}) = (a_1 \mathbf{e}_1 (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2) + a_2 \mathbf{e}_2) E_1^2 E_2 \exp i \mathbf{q}_E \mathbf{r}, \quad \mathbf{q}_E = (2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \quad (2)$$

В (1), (2) обозначено $E_{1,2}$, $e_{1,2}$, $k_{1,2}$ – амплитуды, поляризации и волновые векторы гармоник; $a_{1,2}$ – фотогальванические коэффициенты. Разделение зарядов током $J(\mathbf{r})$ приводит к возникновению и росту электростатического поля E :

$$\frac{dE}{dt} = \frac{4\pi}{\epsilon}(J - J_c); \quad (3)$$

J_c – ток проводимости, ϵ – статическая диэлектрическая проницаемость. При малых значениях E , пока электропроводность σ не зависит от поля (но может зависеть от интенсивности света), ток проводимости пропорционален полю: $J_c = \sigma(I_1, I_2)E$, и в образце накапливается периодическая решетка поля с волновым вектором \mathbf{q}_E : $E = (J/\sigma)(1 - \exp(-t/\tau))$, $\tau = \epsilon/4\pi\sigma$. Решетка поля сопровождается решеткой эффективной поляризуемости второго порядка $\chi^{(2)} \sim \chi^{(3)}E$ с вектором $\mathbf{q}_\chi = \mathbf{q}_E$ и решеткой показателя преломления $\Delta n \sim \chi^{(3)}E^2$ с вектором $\mathbf{q}_n = 2\mathbf{q}_E$, то есть стекло превращается в неоднородную оптически одноосную среду. В нашем эксперименте рассмотренные решетки играют роль начального возмущения и моделируют флуктуации электростатического поля.

Возникновение в возмущенной среде эффективной поляризуемости второго порядка создает условия для появления КФГ-тока при монохроматическом освещении среды, поскольку становится возможной ГВГ. Вследствие этого малые пространственные флуктуации поля могут усиливаться монохроматическим светом и должно происходить взаимное изменение оптических свойств среды и светового потока. Сценарий такой неустойчивости системы можно представить, используя идею работы [4], следующим образом.

Пусть в среде существует слабое флуктуационное поле $E_f(\mathbf{r})$. Падающий на среду монохроматический свет $E(\omega)$ в области, где $E_f \neq 0$, генерирует поле удвоенной частоты $E_{2g}(2\omega, \mathbf{k}_{2g})$. Поля этой гармоники и падающего света индуцируют КФГ-ток $J_s \sim E_{2g}E_1^2$, который при определенных условиях усиливает начальное разделение заряда, вызывая рост поля во времени. Иными словами, КФГЭ порождает в системе положительную обратную связь, приводящую к световой (точнее, к светоэлектрической) неустойчивости системы. Максимально должны усиливаться фурье-компоненты поля $E_f(\mathbf{q}) \exp i(\mathbf{q}\mathbf{r})$ пространственно синфазные с током: $\mathbf{q} = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_{2g}$ и поляризованные так, чтобы обеспечить максимальную эффективность ГВГ. Поэтому при развитии неустойчивости следует ожидать формирования преимущественно периодических анизотропных структур. В нашем эксперименте условия максимального усиления были выполнены за счет выбора поляризации и угла падения света на решетку. При этом генерируется вторая гармоника с $\mathbf{q}_{2g} = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{g}_E$, и пространственная синфазность токовой решетки и начальной решетки поля возникает автоматически.

Важно подчеркнуть, что рассмотренный механизм должен приводить к неустойчивости флуктуаций анизотропии не только электростатического происхождения, необходимо лишь, чтобы они сопровождалась отличной от нуля поляризуемостью второго порядка. Поэтому рассмотренная неустойчивость флуктуаций оптической анизотропии имеет довольно универсальный характер и может проявляться в среде с любой симметрией.

Сопоставляя экспериментальные результаты с рассмотренной моделью, можно видеть, что они качественно укладываются в рамки модели, исключая стабилизацию неустойчивости и релаксацию решеток.

Рассмотрим возможные механизмы стабилизации, оставаясь в рамках феноменологической модели (3). КФГ-ток J_s определен соотношением (2), только вместо внешнего $E(2\omega)$ в нем фигурирует $E_{2g}(2\omega)$, возникающее вследствие генерации. Стабилизация неустойчивости возникает при смене знака $J_s - J_c$. Это возможно, если, начиная с некоторого значения поля, J_s растет с ростом поля медленнее, чем J_c , или убывает. Именно последнее и соответствует нашим экспериментам (см. п.2): с ростом амплитуды решетки (при $\eta_d / \eta_0 > 1$) интенсивность генерируемой гармоники резко уменьшается и, соответственно, должен уменьшаться ток J_s .

Причина уменьшения эффективности ГВГ связана с резким возрастанием поглощения света на этой частоте при увеличении амплитуды решетки выше стационарного уровня. Специальные эксперименты показали, что, проходя через решетку, излучение удвоенной частоты может ослабляться на оси луча в 30 раз, независимо от поляризации падающего света. На рис.4 приведена зависимость от времени интенсивности $I(2\omega)$ света удвоенной частоты, прошедшего через решетку, при записи начального возмущения вплоть до насыщения. На вставке показано типичное распределение интенсивности по диаметру прошедшего луча. Поскольку поперечный размер решетки несколько меньше диаметра луча, то полученное распределение приблизительно отражает зависимость ослабления от поперечного распределения амплитуды решетки. Если предположить для грубой оценки экспоненциальный характер затухания на длине решетки, то наблюдаемое ослабление соответствует поглощению $\alpha \sim 7\text{см}^{-1}$. По сравнению с невозмущенной средой изменение поглощения составляет три порядка.

Отметим, что увеличение поглощения света наблюдалось [11] в стекловолоконных световодах при длительном прохождении через них взаимнокогерентного бихроматического света с частотами ω и 2ω , а также при монохроматическом освещении германо-алюминосиликатных световодов, легированных эрбием [12]. Природа гигантского возрастания поглощения в решетках нам на данном этапе исследований не ясна, однако экспериментально установлено, что в наших условиях она не связана с распадными механизмами (генерацией субгармоник).

Заметим еще, что дополнительный вклад в стабилизацию неустойчивости могли бы дать возрастание тока J_c , вследствие увеличения фотопроводимости при ГВГ, или увеличение проводимости с ростом поля. Однако эти механизмы не должны приводить к уменьшению эффективности ГВГ при увеличении амплитуды решеток и, следовательно, их вклады не являются определяющими в наших экспериментах, хотя могут быть значимыми в других условиях (материалах).

Разумеется, рассмотренная схема не претендует на исчерпывающее описание наблюдаемых явлений. В нее не включены диффузия и рекомбинация носителей заряда, демпфирующие неустойчивость, и не учитывается нелокальная связь электростатического поля с E_{2g} . Такая связь должна иметь интегральное представление, описывающее совместный рост гармоники в пространстве, и получаться при самосогласованном решении задачи (см., например, [4, 5]). Однако мы полагаем, что учет этих факторов не должен принципиально изменить интерпретацию результатов эксперимента.

Авторы благодарят М.В.Энтина за плодотворные дискуссии и обсуждение результатов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 96-62-19353).

1. U.Osterberg and W.Margulis, *Opt.Lett.* **11**, 516 (1986).
2. B.Valk, E.M.Kim, and M.M.Salour, *Appl. Phys. Lett.* **51**, 722 (1987).
3. М.К.Балакирев, Л.И.Вострикова, В.А.Смирнов, М.В.Энтин, Письма в ЖЭТФ **63**, 166 (1996).
4. M.I.Dyakonov and A.S.Furman, *Comm. Cond. Mat. Phys.* **16**, 19 (1992).
5. Е.М.Дианов, П.Г.Казанский, Д.Ю.Степанов, *Квантовая электроника* **17**, 926 (1990).
6. Н.Б.Баранова, Б.Я.Зельдович, Письма в ЖЭТФ **45**, 562 (1987).
7. Э.М.Баскин, М.В.Энтин, Письма в ЖЭТФ **48**, 554 (1988).
8. М.В.Энтин, ФТП **23**, 1066 (1989).
9. В.Б.Сулимов, ЖЭТФ **101**, 1749 (1992).
10. М.К.Балакирев, В.А.Смирнов, Письма в ЖЭТФ **61**, 537 (1995).
11. M.C.Farries and M.E.Fermann, *Electron. Lett.* **24**, 294 (1989).
12. J.Miguel Hickmann, E.A.Gouveia, A.S.Gouveia-Neto, et al., *Opt.Lett.* **19**, 1726 (1994).