

Оптическое усиление фотоиндуцированных решеток поляризуемости в фосфатном стекле

М. К. Балакирев, Л. И. Вострикова¹⁾, В. А. Смирнов, М. В. Энтин

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 11 мая 2004 г.

Показано, что решетки поляризуемости второго порядка, предварительно записанные бихроматическим светом в фосфатном стекле, могут быть усилены при воздействии на них монохроматического излучения. Усиление возникает вне зависимости от поляризации и направления распространения усиливающего света и для различных длин волн. Явление связывается с асимметрией оптических переходов между локальными центрами в изотропной среде в присутствии электрического поля. Теоретически показано, что в системе возможно образование чередующихся доменов электрического поля, размер которых зависит от амплитуды решетки.

PACS: 42.25.-p, 42.65.-k

Известно, что длительное воздействие бихроматического взаимно когерентного излучения с частотами ω и 2ω на стекло может приводить к понижению его оптической симметрии и возникновению четных порядков в разложении поляризации по световому полю. Наведенная нелинейная поляризуемость обычно неоднородно распределена, образуя решетку [1–5]. Было обнаружено, что в ряде оксидных стекол решетки поляризуемости (РП) могут усиливаться при воздействии на них монохроматического излучения [5–9]. Усиление решеток наблюдалось в фазово-согласованных условиях, когда существует возможность его объяснения генерацией второй гармоники падающего света.²⁾ В настоящей работе мы сообщаем об обнаружении оптического усиления РП, не зависящего ни от поляризации, ни от направления распространения света, и, следовательно, не связанного с нелинейным взаимодействием волн.

Для понимания дальнейшего отметим, что наведенная поляризуемость решетки считается обусловленной электростатическим полем $\mathbf{E}(\mathbf{r})$, возникающим вследствие разделения и накопления заряда в стекле за счет когерентного фотогальванического эффекта [12–14], либо за счет долгоживущей фотополяризации [1, 15, 16]. Две взаимно когерентные свето-

вые волны с частотами ω и 2ω и волновыми векторами \mathbf{k}_ω и $\mathbf{k}_{2\omega}$ определяют характерный волновой вектор модуляции электростатического поля $\mathbf{k} = \mathbf{k}_{2\omega} - 2\mathbf{k}_\omega$, а огибающая поля задается распределением световых полей $\mathbf{E}_\omega^2(\mathbf{r})$ и $\mathbf{E}_{2\omega}(\mathbf{r})$. Статическое поле порождает пространственно-периодические решетки нелинейных поляризуемостей для светового поля. В низшем порядке по полю \mathbf{E} возникает $\hat{\chi}_2 = \hat{\chi}_3 \mathbf{E}(\mathbf{r})$, где $\hat{\chi}_3$ – поляризуемость третьего порядка.

В качестве образца для экспериментального исследования использовалось объемное ($1 \times 1 \times 1$ см) щелочное метафосфатное стекло на основе KPO_3 с добавками 20 мол.% Sb_2O_3 , 14 мол.% Nb_2O_3 и 0.2 мол.% Er_2O_3 .

Эксперимент состоял в следующем.

На первом этапе проводилась запись начальной РП (решетки $\chi^{(2)}$), см. рис.1. Излучение импульсного YAG:Nd^{3+} -лазера ($\lambda = 1.06$ мкм, длитель-

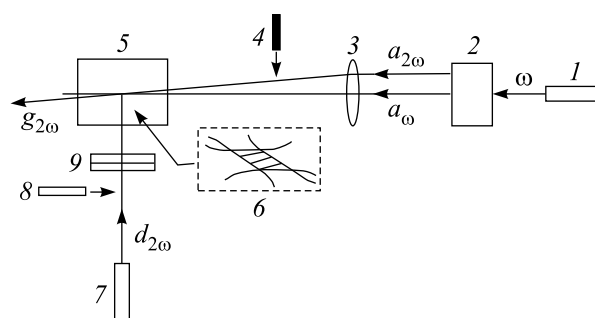


Рис.1. Схема эксперимента: 1 – YAG:Nd^{3+} -лазер, 2 – система элементов оптики для удвоения частоты и пространственного разделения лучей, 3 – линза, 4 – шторка, 5 – стекло, 6 – РП $\chi^{(2)}$, 7 – дополнительный YAG:Nd^{3+} -лазер, 8 – пластинка $\lambda/2$, 9 – цилиндрическая линза

¹⁾ e-mail: vostrik@isp.nsc.ru

²⁾ Пространственная периодичность индуцированной РП является фазово-согласованной для волн ω и 2ω , формирующих РП, и автоматически выполняются условия пространственного синхронизма для эффективных трехволновых процессов с участием этих волн (генерации второй гармоники [2, 3] и вырожденного параметрического усиления света [10] на РП $\chi^{(2)}$). Синфазность РП приводит также к эффективной брегговской самодифракции света на модуляции показателя преломления [4, 11].

ность импульса ~ 10 нс, частота повторения 12.5 Гц, энергия в импульсе ~ 46 мДж) и его вторая гармоника (коэффициент преобразования ~ 0.1) пространственно разделялись на два канала с помощью системы оптических элементов. Ослабление второй компоненты излучения в каждом из каналов составляло 10^{10} . Затем излучения основной и удвоенной частот (пучки a_ω и $a_{2\omega}$ на рис.1, соответственно), линейно поляризованные в плоскости их схождения, фокусировались с помощью линзы и пересекались внутри исследуемого стекла. Угол схождения пучков, падающих на образец, составлял 6.2° . Диаметры пучков в фокусе составляли ~ 170 и 120 мкм при пиковых интенсивностях в перетяжке $I_\omega \sim 10^{10}$ Вт/см² и $I_{2\omega} \sim 10^9$ Вт/см².

При воздействии бихроматического света в стекле записывалась РП $\chi^{(2)}$. Ее амплитуда контролировалась по эффективности генерации второй гармоники (ГВГ, луч $g_{2\omega}$ на рис.1), возникающей при прохождении через решетку луча a_ω . Импульсы ГВГ регистрировались с помощью ФЭУ, преобразовывались аналого-цифровым преобразователем напряжения и обрабатывались компьютером. Энергия излучения усреднялась по $10 \div 40$ импульсам. Порог чувствительности регистрирующей системы соответствовал 10^{-11} Дж в импульсе. Для регистрации сигнала $g_{2\omega}$ в процессе записи решетки, луч $a_{2\omega}$ перекрывался на входе в образец на $5 \div 10$ с с интервалом в $5 \div 10$ мин.

На втором этапе эксперимента, после записи начальной РП $\chi^{(2)}$, область РП освещалась лучом a_ω или $a_{2\omega}$. Если РП освещалась a_ω , то наблюдение генерируемой ВГ осуществлялось одновременно. Если же РП освещалась $a_{2\omega}$, то для наблюдения за динамикой амплитуды РП падающий на нее луч $a_{2\omega}$ периодически перекрывался на несколько секунд. В течение этого времени через РП пропускался луч a_ω и измерялась энергия импульсов в пучке $g_{2\omega}$. Затраченные РП записывались вплоть до эффективности преобразования во вторую гармонику $\eta_g \sim 10^{-8}$. Величина η_g определена как отношение энергий в пучках $g_{2\omega}$ и a_ω .

На рис.2 приведены зависимости эффективности преобразования η_g от времени для всей совокупности экспериментов.

Кривая 1 на рис.2 иллюстрирует процесс записи РП бихроматическим светом вплоть до насыщения. Максимальный коэффициент преобразования во вторую гармонику составил $\eta_g \sim 1.5 \cdot 10^{-5}$. Характерное время жизни РП в исследуемом образце было $\sim 7 \div 10$ дней.

На кривых 2–7 представлены результаты измерений усиления фотоиндуцированных РП.

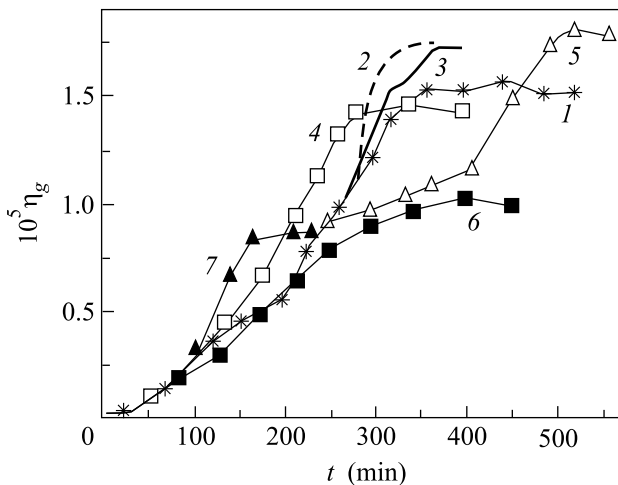


Рис.2. Кинетика эффективности ГВГ на РП $\chi^{(2)}$ в стекле: 1 – при записи РП двухчастотным излучением; 2, 3 – при усилении РП лучом a_ω ; 4, 5 – при усилении лучом $a_{2\omega}$; 6, 7 – при усилении лучом $d_{2\omega}$. Кривые 2, 4, 6 соответствуют поляризации света, параллельной плоскости схождения записывающих лучей, 3, 5, 7 – перпендикулярной

Кривые 2 и 3 иллюстрируют усиление РП в стекле излучением основной частоты (лучом a_ω) с ортогональными поляризациями. Величина η_g росла вплоть до насыщения, что свидетельствовало об увеличении амплитуды РП. Зависимость η_g от поляризации оказалась несущественной.

Кривые 4 и 5 иллюстрируют усиление начальной РП лучом $a_{2\omega}$. Контроль динамики РП описан выше. Видно, что усиление соизмеримо с предыдущим случаем, хотя интенсивности лучей a_ω и $a_{2\omega}$ различаются на порядок. Поворот поляризации падающего света слабо влияет на эффективность усиления (сравни кривые 4 и 5).

Полученные результаты в совокупности указывают на то, что возможный вклад трехволновых процессов, при которых генерируется вторая гармоника, синфазная с решеткой, несуществен или отсутствует вообще.

Для полного исключения трехволновых процессов, способных подпитывать решетку, мы поставили специальный эксперимент. В этом эксперименте для усиления использовался дополнительный лазер YAG:Nd³⁺ с встроенным преобразователем частоты ($\lambda = 0.53$ мкм, длительность импульса ~ 5 нс, частота повторения 12 Гц, энергия в импульсе ~ 40 мДж), см. рис.1. Его излучение фокусировалось в образец с помощью цилиндрической линзы со стороны боковой грани (луч $d_{2\omega}$) и перекрывало всю область начальной РП длиной ~ 5 мм. Интенсивность излучения

в фокальной плоскости составляла $\sim 2 \cdot 10^9$ Вт/см². Результат усиления начальной РП лучом $d_{2\omega}$ показан на рис.2, кривые 6, 7. Как можно видеть, эффективность усиления также не зависит от поляризации усиливающего света и сопоставима с эффективностью “параллельного усиления”, характеризуемого кривыми 4, 5.

Обсудим результаты эксперимента.

Из эксперимента следует, что усиление фотоиндуцированных РП в фосфатном стекле возникает при монохроматической подсветке вне зависимости от частоты света, его поляризации и направления распространения. Такие свойства не согласуются с ранее предложенным [6, 9, 5, 13] механизмом усиления фотоиндуцированных РП в оксидных стеклах, основанным на фазово-согласованном нелинейном взаимодействии волн. Действительно, такой механизм требует, чтобы направление распространения, поляризация и частота усиливающего света были согласованы с подобными характеристиками основных излучений, формирующих начальную РП. В нашем эксперименте усиление наблюдалось и при нарушении этих условий.

Поэтому механизм усиления следует искать в медленном изменении материальных констант (эффективных коэффициентов квадратичной нелинейности) при воздействии света. Симметрия исходного материала не допускает квадратичной нелинейности, и воздействие монохроматического света не индуцирует ее. По этой причине в отсутствие затравочной решетки квадратичная нелинейность при подсветке не появляется, а механизм заведомо связан с самоусиливающимся понижением симметрии (скорость изменения отклонения от изотропной симметрии растет с самим отклонением). Наиболее естественным промежуточным агентом в таком процессе является квазистационарное электрическое поле, усиливающееся при воздействии света. В качестве механизма усиления поля мы рассматриваем асимметричные переходы между локализованными состояниями при наличии статического электрического поля. Для усиления необходимо преимущественное возбуждение электронов со смещением в пространстве против силы, создаваемой электрическим полем. Предположим, что в стекле существует две группы локализованных одноуровневых состояний A и B (см. рис.3, по оси X отложена координата, по оси Y – энергия). Плотность состояний группы B имеет колоколообразный вид с максимумом при энергии ϵ_2 . В равновесном состоянии уровни A заполнены электронами, а уровни B пусты. Введем характерную длину прыжка электрона в пространстве R , определяющую

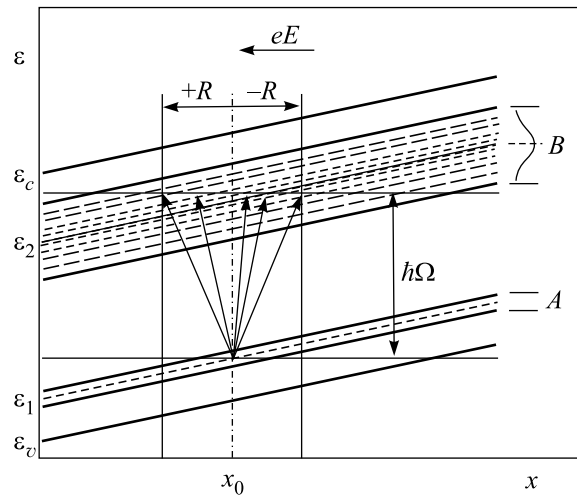


Рис.3. Схема оптических переходов

вероятность туннельного перехода между локальными уровнями, и будем считать ее постоянной. При поглощении кванта света $\hbar\Omega$ электроны с уровня A переходят в состояния B , как показано стрелками на рис.3. Непосредственно из рис.3 видно, что при достаточно большой энергии кванта $\hbar\Omega > \epsilon_2 - \epsilon_1$ электроны преимущественно переходят против направления внешней силы, поскольку плотность состояний для таких переходов выше, чем для переходов по направлению силы (для случая $\hbar\Omega < \epsilon_2 - \epsilon_1$ эффект сменяется на противоположный). Далее, если фотовозбужденный электрон при возвращении в невозбужденное состояние релаксирует в пространстве изотропно, то в среде возникает поток электронов, что соответствует появлению абсолютной отрицательной фотопроводимости (АОФП) [17, 18]. В противном случае, если электрон релаксирует точно в исходное состояние (близнецовая рекомбинация), то в среде возникает отрицательная фотополяризация [15, 19].

Приведенную схему можно применить к эксперименту, предполагая, что в исследуемом стекле имеются две группы активных уровней типа B , отстоящие от уровня A на интервалы ≤ 1.17 и 2.34 эВ, и, соответственно, порождающие усиление начальной РП при воздействии на нее излучения основной и удвоенной частот. В общем случае, в стекле возможны более сложные схемы асимметрии фотопереходов, учитывающие наличие многоуровневых центров [20], а также комбинация механизмов. Экспериментальные данные не позволяют точно сделать выбор в пользу какого-либо из механизмов. Однако учитывая большие времена жизни индуцированных РП и отсутствие эффективного фотостирания (фотопроводимости) в исследуемом нами фосфатном стекле, мы

склонны предполагать, что наблюдаемое усиление РП скорее всего связано с отрицательной фотополяризуемостью.

Остановимся вкратце на кинетике явления, выбрав для рассмотрения механизм отрицательной фотополяризуемости. Очевидно, что скорость роста поляризации \mathbf{P}_s нелинейна по полю и должна иметь колоколообразную зависимость. Наиболее простое уравнение, отражающее этот факт, имеет следующий вид:

$$\frac{d}{dt}\mathbf{P}_s = -\alpha\mathbf{E} - \beta\mathbf{E}^3 + \gamma\mathbf{E}^5. \quad (1)$$

Первые два слагаемых в правой части описывают усиление \mathbf{P}_s , последнее слагаемое – демпфирование. Все коэффициенты α , β , γ зависят от интенсивности света. Положительные знаки α и β соответствуют усилению. Исключая поляризацию, получаем:

$$\frac{d}{dt}\mathbf{E} + \mathbf{E}(\Gamma - \beta\mathbf{E}^2 + \gamma\mathbf{E}^4) = 0, \quad \Gamma \equiv \frac{1}{\tau} - \alpha, \quad (2)$$

где Γ – линейный декремент. Введенная величина τ характеризует время релаксации электрического поля. Она может определяться как временем жизни фотополяризации, так и проводимостью среды. В зависимости от интенсивности падающего света, значение Γ может быть больше или меньше нуля. Усиление поля существует, если

$$\Gamma - \beta\mathbf{E}^2 + \gamma\mathbf{E}^4 < 0. \quad (3)$$

При $\Gamma > 0$ и $\beta^2 \geq 4\gamma\Gamma$ формально существует два стационарных состояния (или порога):

$$E_a^2 = \frac{1}{2\gamma}(\beta - \sqrt{\beta^2 - 4\gamma\Gamma}),$$

$$E_b^2 = \frac{1}{2\gamma}(\beta + \sqrt{\beta^2 - 4\gamma\Gamma}).$$

Первое состояние неустойчиво. Поля $E > E_a$ усиливаются, поля $E < E_a$ затухают. Иначе говоря, первый порог, E_a , соответствует началу усиления, второй, E_b , – насыщению. Если $\Gamma \rightarrow 0$, то $E_a \rightarrow 0$, и существует только второй порог – насыщение. Наконец, если $\beta^2 < 4\gamma\Gamma$, то эффект усиления отсутствует. Наличие двух порогов для пространственно синусоидальной решетки означает разбиение на доменные области. А именно, область с $E(x) > E_a$ растет до насыщения. Область с $E(x) < E_a$ стремится к нулю. Поэтому, в зависимости от начальной амплитуды решетки, образуются чередующиеся доменные области разного размера. Отметим также, что подобная картина кинетики усиления поля должна наблюдаться и при АОФП.

В настоящей работе экспериментально доказана возможность усиления квадратичной оптической нелинейности в исходно изотропной среде (фосфатном стекле) под действием освещения. Мы установили, что это явление не связано с нелинейным взаимодействием волн. Наиболее вероятным механизмом, ответственным за эффект, представляется отрицательная фотополяризация за счет однофотонных межпримесных переходов при наличии электрического поля.

Авторы выражают благодарность О. С. Щавелеву (ГОИ им. С. И. Вавилова) за предоставленный образец фосфатного стекла. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (# 02-02-17695, # 04-02-16398) и НАТО (PST.CLG 979127).

1. Q. H. Stolen and H. W. K. Tom, *Optics Lett.* **12**, 585 (1987).
2. Ю. В. Глущенко, В. Б. Смирнов, *Оптика и спектроскопия* **72**, 990 (1992).
3. Д. С. Дианов, Е. М. Стародубов, *Квантовая электроника* **22**, 419 (1995).
4. М. К. Балакирев, В. А. Смирнов, *Письма в ЖЭТФ* **61**, 537 (1995).
5. М. К. Balakirev, *Physics of Vibrations* **6**, 233 (1998).
6. M. I. Dyakonov and A. S. Furman, *Comments Condens. Matter Phys.* **16**, 19 (1992).
7. М. Я. Дьяконов, А. С. Фурман, *Оптика и спектроскопия* **79**, 871 (1995).
8. М. К. Балакирев, Л. И. Вострикова, В. А. Смирнов, М. В. Энтин, *Письма в ЖЭТФ* **63**, 166 (1996).
9. М. К. Балакирев, Л. И. Вострикова, В. А. Смирнов, *Письма в ЖЭТФ* **66**, 771 (1997).
10. М. К. Balakirev, L. I. Vostrikova, and V. A. Smirnov, *Optics Comm.* **178**, 181 (2000).
11. М. К. Балакирев, Л. И. Вострикова, В. А. Смирнов, *Квантовая электроника* **32**, 546 (2002).
12. Э. М. Баскин, М. В. Энтин, *Письма в ЖЭТФ* **48**, 554 (1988).
13. Е. М. Дианов, П. Г. Казанский, Д. Ю. Степанов, *Квантовая электроника* **17**, 926 (1990).
14. В. Б. Сулимов, *ЖЭТФ* **101**, 1749 (1992).
15. В. Р. Antonyuk, *Optics Comm.* **181**, 191 (2000).
16. М. К. Балакирев, В. А. Смирнов, *Письма в ЖЭТФ* **77**, 264 (2003).
17. В. Н. Новиков, Б. И. Стурман, *ЖЭТФ* **94**, 226 (1988).
18. В. К. Малиновский, В. Н. Новиков, Б. И. Стурман, *ЖЭТФ* **91**, 594 (1986).
19. Б. П. Антонюк, В. Б. Антонюк, *УФН* **171**, 61 (2001).
20. В. К. Малиновский, В. Н. Новиков, Б. И. Стурман, *Письма в ЖЭТФ* **41**, 285 (1985).