

07;12

©1993 г.

ФОТОИНДУЦИРОВАННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ В СИЛЛЕНИТАХ*А.А.Липовский, С.Э.Хабаров*

Теоретически исследован процесс фотоиндуцированного поглощения светового излучения в кристаллах типа силленитов. Анализ проведен на основе трехуровневой модели энергетической структуры кристалла. Рассмотрена зависимость коэффициента фотоиндуцированного поглощения от интенсивностей зондирующего и засвечивающего излучения, а также динамика релаксации индуцированного коэффициента поглощения. Расчетные зависимости находятся в хорошем соответствии с зависимостями, ранее наблюдававшимися авторами при экспериментальном исследовании фотоиндуцированного поглощения.

В последние годы появилось значительное количество публикаций, посвященных монокристаллам силленитов. Одним из интересных свойств подобных кристаллов является фотохромное индуцирование дополнительного оптического поглощения в красной области спектра при освещении кристаллов излучением сине-зеленой области спектра [1,2]. Результаты исследований спектральных характеристик эффекта позволили связать его появление с заполнением под влиянием засветки донорных уровней, лежащих вблизи дна зоны проводимости на расстояниях, соответствующих энергии зондирующего излучения, и последующим поглощением зондирующего излучения при переходе электронов с этих уровней в зону проводимости [3].

Ранее этот процесс исследовался нами в интегрально-оптической геометрии, при которой зондирующее излучение распространяется в виде моды планарного световода, а засвечивающее излучение падает нормально на его поверхность [4]. В результате удалось обеспечить хорошую однородность засвета, так как поглощение засвечивающего излучения на толщине световода (несколько мкм) ничтожно мало. Однако более существенным является тот факт, что плотность мощности, распространяющейся в оптическом волноводе излучения, оказывается достаточно высокой для того, чтобы привести к обеднению уровней, ответственных за поглощение зондирующего излучения. Экспериментально это было подтверждено наблюдавшейся при наличии засвета нелинейностью пропускания образцов, т.е. зависимостью величины индуцированного поглощения от интенсивностей как засвечивающего, так и зондирующего излучения, а также рядом других экспериментов, описанных там же [4].

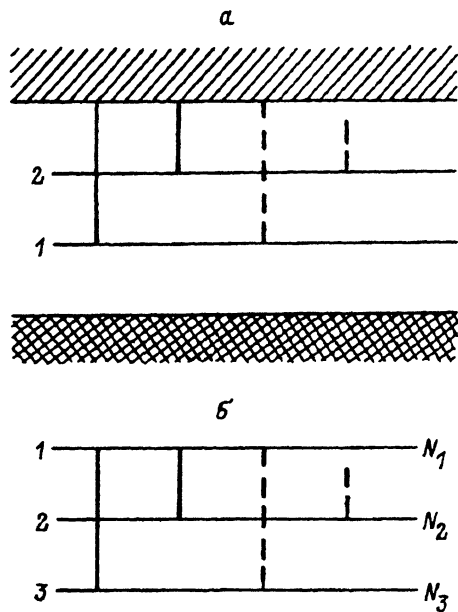


Рис. 1. Упрощенная схема уровней (а) и трехуровневая модель (б) для энергетической структуры силленитов.

Целью настоящего исследования является анализ зависимости фотоиндуцированного поглощения от интенсивностей как засвечивающего, так и зондирующего излучения, а также от времени на основе простой трехуровневой модели, предложенной ранее для интерпретации процесса [5].

Механизм фотохромии в силленитах обусловлен увеличением при свете населенности уровней, расположенных от дна зоны проводимости на таком расстоянии, которое соответствует энергии кванта зондирующего излучения с длиной волны λ_2 . При распространении такое излучение будет поглощаться, возбуждая с этих уровней электроны в зону проводимости. При этом коэффициент поглощения будет пропорционален соответствующей населенности N_2 . Заброс электронов в зону проводимости осуществляется и при возбуждении глубоких примесных уровней излучением с длиной волны λ_1 , соответствующей расстоянию между этими уровнями и дном зоны проводимости. Возбужденные в зону проводимости электроны захватываются ловушками и релаксируют на более глубокие уровни, принадлежащие ко второй группе (рис. 1,а). Таким образом, явление фотоиндуцированного поглощения может быть схематически описано как процесс перераспределения электронов между уровнями 1 и 2 и зоной проводимости при воздействии на систему световых волн с длинами λ_1 и λ_2 . При использовании фиксированных длин волн вместо зоны проводимости удобно ввести эквивалентный уровень 3. Таким образом, далее мы будем рассматривать систему уровней, представленную на рис. 1,б. Релаксацию электронов с уровня 2 на уровень 1 можно считать запрещенной. Это хорошо соответствует экспериментальным данным: после предварительного освещения на длине волн λ_1 при содержании образцов в темноте дополнительное индуцированное поглощение сохраняется в течение длительного времени.

Процессы перезаселения уровней могут быть описаны с помощью системы уравнений

$$\frac{\partial N_3}{\partial t} = I_1 b_1 N_1 + I_2 b_2 N_2 - a_1 N_3 - a_2 N_3,$$

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} = a_2 N_3 - I_2 b_2 N_2,$$

$$N_1 + N_2 + N_3 = N. \quad (1)$$

Здесь N_1 , N_2 , N_3 и N — населенности соответствующих уровней и общее число электронов; коэффициенты a_1 и a_2 характеризуют вероятность релаксации с уровня 3 на уровни 1 и 2 в единицу времени соответственно; коэффициенты b_1 и b_2 характеризуют вероятность возбуждения электронов с уровней 1 и 2 на уровень 3 в единицу времени под действием излучения единичной интенсивности соответственно.

Стационарное решение системы (1), соответствующее $\partial N_i / \partial t = 0$ ($i = 1, 2, 3$), дает

$$\frac{N_2}{N} = \frac{I_1 b_1 a_2}{a_2 I_1 b_1 + a_1 b_2 I_2 + b_1 b_2 I_1 I_2}. \quad (2)$$

Коэффициент индуцированного поглощения α можно с хорошей точностью считать пропорциональным N_2/N . Поэтому зависимость от интенсивностей I_1 и I_2 в статическом режиме будет описываться соотношением, аналогичным (2), 0

$$\alpha(I_1, I_2) = A \frac{I_1}{a_2 b_1 I_1 + a_1 b_2 I_2 + b_1 b_2 I_1 I_2}. \quad (3)$$

Вид зависимости $\alpha = f(I_1, I_2)$ иллюстрируется рис. 2, а, б. Ход зависимостей $\alpha = f(I_1, I_2)$ имеет вид, близкий к наблюдавшемуся экспериментально. Сопоставление формы реальных зависимостей $\alpha = f(I_1, I_2)$ с зависимостью, описываемой соотношением (3), позволит получить информацию о связи коэффициентов a_1 , b_1 , a_2 и b_2 , описывающих модельную трехуровневую систему.

При наличии поглощения зависимость интенсивности зондирующего излучения от координаты x , отсчитываемой вдоль направления распространения излучения, может быть описана как

$$\frac{dI_2}{dx} = -\alpha(I_1, I_2) \cdot I_2,$$

где α описывается соотношением (3) при $I_2(0) = I_0$.

Легко можно показать, что для получения зависимости $I_2 = f(I_0)$ необходимо решить трансцендентное уравнение

$$a_2 b_1 \ln \frac{I_2}{I_0} + (a_1 b_2 + b_1 b_2 I_1)(I_2 - I_0) = -L A I_1. \quad (4)$$

Здесь L — длина области, в которой имеет место фотоиндуцированное поглощение. Характерный вид зависимости $I_2/I_0 = f(I_0)$ при фиксированном значении L и различных интенсивностях засвета I_1 представлен

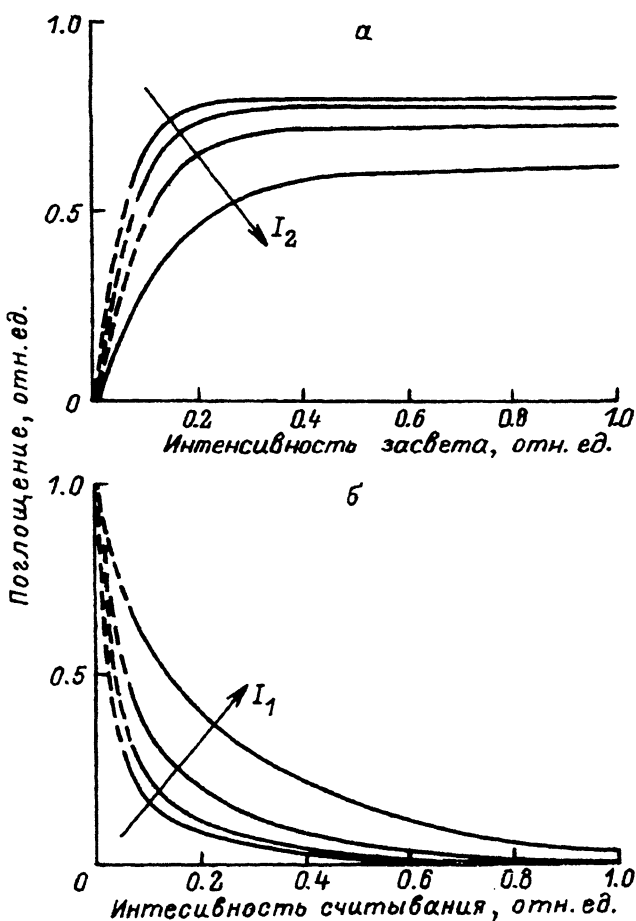


Рис. 2. Величина коэффициента фотоиндуцированного поглощения в зависимости от интенсивности засвечивающего (а) и считывающего (б) излучения.

на рис. 3. Видно, что степень нелинейности кривой возрастает с увеличением интенсивности засвечивающего излучения. Полученная на основании (4) зависимость $I_2 = f(I_0)$ хорошо совпадает с наблюдавшейся нами экспериментально [6].

Для расчета временных зависимостей α следует решить систему (1) с учетом начальных условий. В этом случае зависимость $N_2(t)$ описывается решением дифференциального уравнения

$$\ddot{N}_2 + \dot{N}_2(a_1 + a_2 + I_1 b_1 + I_2 b_2) + N_2(I_1 b_1 a_2 + I_2 b_2 a_1 + I_1 I_2 b_1 b_2) = N I_1 b_1 a_2. \quad (5)$$

Наибольший интерес представляют случаи непроэкспонированного предварительно образца (при $t = 0$, $N_2 = N_3 = 0$, $N_1 = N$) и полностью проэкспонированного образца (при $t = 0$, $N_1 = N_3 = 0$, $N_2 = N$). Эти условия могут быть переписаны в виде

$$N_2 \Big|_{t=0} = 0, \quad \left(\frac{\partial N_2}{\partial t} + I_2 b_2 N_2 \right) \Big|_{t=0} = 0$$

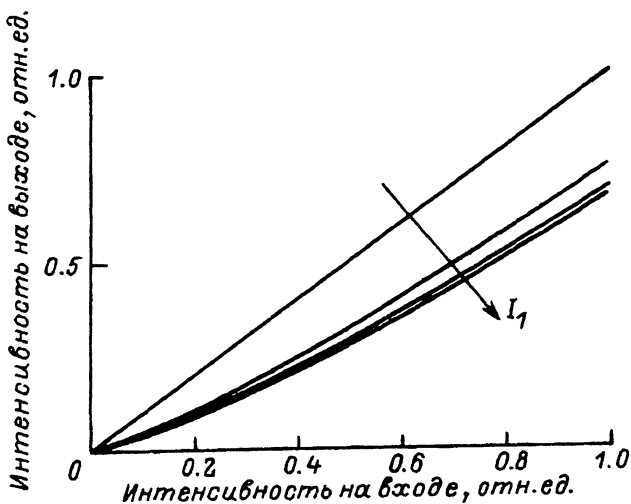


Рис. 3. Зависимость интенсивности света на выходе структуры от интенсивности света на входе для различных интенсивностей засвечивающего излучения.

для непроэкспонированного образца и

$$N_2 \Big|_{t=0} = N, \quad \left(\frac{\partial N_2}{\partial t} + I_2 b_2 N_2 \right) \Big|_{t=0} = 0$$

для предварительно проэкспонированного образца.

Уравнение (5) имеет вид

$$\ddot{x} + \beta \dot{x} + \gamma x = \delta. \quad (6)$$

Условие $\lambda^2 = \beta^2 - 4\gamma^2 > 0$ в рассматриваемом нами случае выполняется всегда. Таким образом, решение уравнения (6) имеет вид

$$x = C_1 \exp\left(\frac{-\beta + \lambda}{2} t\right) + C_2 \exp\left(\frac{-\beta - \lambda}{2} t\right) + \frac{\delta}{\gamma}. \quad (7)$$

В нашем случае

$$\beta = a_1 + a_2 + I_1 b_1 + I_2 b_2,$$

$$\gamma = I_1 b_1 a_2 + I_2 b_2 a_1 + b_1 b_2 I_1 I_2,$$

$$\delta = N I_1 b_1 a_2,$$

$$\lambda^2 = (a_1 + a_2)^2 + (I_1 b_1 - I_2 b_2)^2 + 2(I_1 b_1 - I_2 b_2)(a_1 - a_2). \quad (8)$$

Ситуации с отсутствием предварительного засвета соответствует система уравнений для C_1 и C_2

$$C_1 + C_2 + \delta/\gamma = 0, \quad C_1 \left(\frac{-\beta + \lambda}{2}\right) + C_2 \left(\frac{-\beta - \lambda}{2}\right) = 0, \quad (9)$$

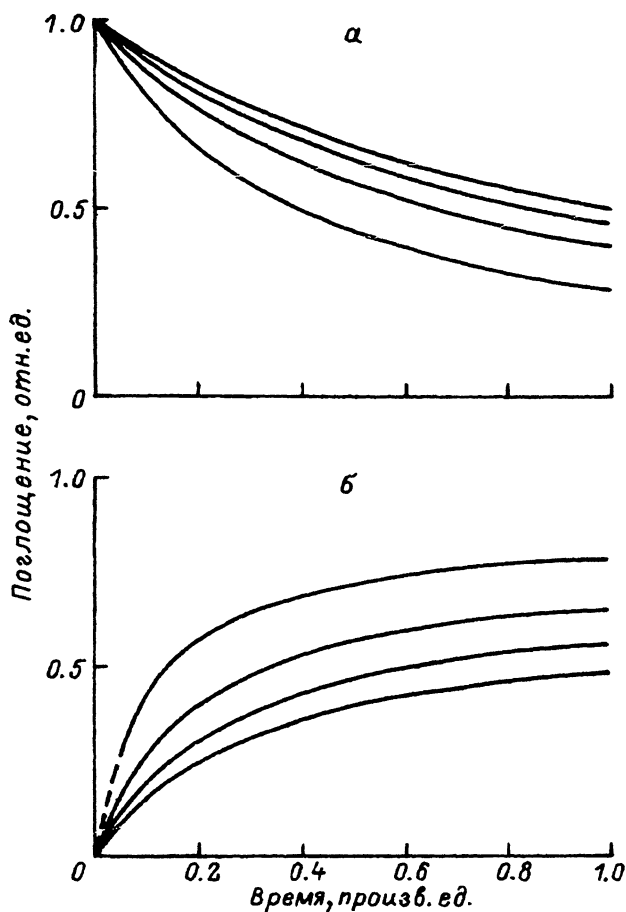


Рис. 4. Временные зависимости коэффициента фотоиндуцированного поглощения для непроэкспонированного (а) и полностью проэкспонированного (б) образцов.

имеющая своим решением

$$C_1 = -\frac{\delta}{2\gamma} \left(1 + \frac{\beta}{\lambda} \right), \quad C_2 = \frac{\delta}{2\gamma} \left(1 - \frac{\beta}{\lambda} \right). \quad (10)$$

Наличие предварительной экспозиции соответствует система вида

$$C_1 + C_2 + \frac{\delta}{\gamma} = N,$$

$$C_1 \left(\frac{-\beta + \lambda}{2} \right) + C_2 \left(\frac{-\beta - \lambda}{2} \right) = 0 \quad (11)$$

с решением

$$C_1 = \frac{1}{2} \left(\frac{N\beta}{\lambda} - \frac{\beta\delta}{\gamma\lambda} + N - \frac{\delta}{\gamma} \right),$$

$$C_2 = \left(N - \frac{\delta}{\lambda} - \frac{N\beta}{\lambda} + \frac{\beta\delta}{\gamma\lambda} \right). \quad (12)$$

Соответствующие временные зависимости, рассчитанные для ситуаций $N_2|_{t=0} = 0$ и $N_2|_{t=0} = N$, представлены на рис. 4,а,б соответственно. Эти зависимости также находятся в качественном соответствии с результатами экспериментов.

Таким образом, анализ процессов фотоиндуцированного поглощения на основе простой трехуровневой модели позволил описать поведение системы “в статике”, т.е. при адиабатическом изменении интенсивностей засветки и зондирующего излучения, и “в динамике”, т.е. в зависимости от времени при фиксированных интенсивностях. Полученные зависимости хорошо соответствуют аналогичным зависимостям, наблюдавшимся ранее в экспериментах. Предложенный подход дает возможность определения параметров эквивалентной трехуровневой модели на основании оптических измерений.

В заключение авторы благодарят В.М.Абусева за предоставление ряда экспериментальных данных.

Список литературы

- [1] Гусев В.А., Детиненко В.А., Соколов А.П. // Автометрия. 1983. № 5. С. 35–41.
- [2] Wardzynski W., Lukasiwicz T., Zmiga J. // Opt. Commun. 1979. Vol. 30. N 2. P. 203–205.
- [3] Гудаев О.А., Гусев В.А. Препринт института автоматики и электрометрии. № 248. 1984. 38 с.
- [4] Леонов Е.И., Хабаров С.Э., Липовский А.А., Абусев В.М. // ЖТФ. 1988. Т. 58. Вып. 11. С. 2182–2186.
- [5] Кудзин А.Ю., Панченко Г.В., Трусеева Н.А. // УФЖ. 1984. Т. 29. Вып. 9. С. 1414–1417.
- [6] Абусев В.М., Леонов Е.И., Липовский А.А., Хабаров С.Э. // Письма в ЖТФ. 1987. Т. 13. Вып. 20. С. 1240–1243.

С.-Петербургский государственный
технический университет

Поступило в Редакцию
2 сентября 1991 г.