

УДК 535.215.537.874.6

© 1990

СВОЙСТВА ИМПУЛЬСНЫХ ГОЛОГРАММ В КРИСТАЛЛАХ ТИПА BSO

А. Л. Хромов, М. П. Петров, А. А. Камшилин

Приведены результаты экспериментальных исследований свойств голограмм, формирующихся в кристаллах типа BSO под действием импульсного излучения. Показано, что в рассматриваемых условиях в кристаллах типа BSO наряду с фазовой фоторефрактивной решеткой присутствует также и амплитудная решетка, обусловленная фотохромным эффектом. Предложена полуколичественная модель процессов формирования и взаимного влияния двух указанных решеток.

В последнее время активно исследуются особенности фоторефрактивного эффекта в кристаллах со структурой силленита при их освещении мощными световыми импульсами нано- и пикосекундной длительности [1-4]. Процесс формирования голограммы под действием записывающего импульса носит в целом сложный характер и продолжается в течение значительного времени после окончания действия импульса. При всем разнообразии условий проведенных экспериментов можно считать достоверно установленным, что весь процесс формирования голограммы разбивается на два этапа. На первом происходит весьма быстрое нарастание амплитуды голографической решетки, занимающее отрезок времени порядка длительности записывающего импульса $\tau_n \approx 30$ нс. В дальнейшем этот первый этап мы будем называть быстрой компонентой процесса записи. На втором этапе происходит сравнительно медленный рост амплитуды голографической решетки (характерное время составляет единицы миллисекунд), называемый в дальнейшем медленной компонентой.

В отношении физической природы медленной компоненты авторы большинства работ придерживаются единого мнения, состоящего в том, что она обусловлена фоторефрактивным эффектом. В то же время основные характеристики медленной компоненты, в частности характерное время ее нарастания, не нашли исчерпывающего объяснения. Кроме того, мнения авторов разделились в вопросе о природе быстрой компоненты (см., например, [1, 2]). Так, высказанное в [1] предположение о том, что она связана с быстрым локальным разогревом кристалла, не нашло впоследствии убедительного доказательства. Авторы, отстаивающие фоторефрактивную природу быстрой решетки, формирующейся в кристаллах BSO под действием наносекундных записывающих импульсов [2], вынуждены пересматривать неоднократно проверенные ранее значения параметров кристаллов BSO, такие как подвижность носителей. Трудности, связанные с таким пересмотром, значительно усугубляются, когда речь заходит об интерпретации результатов, полученных в пикосекундном диапазоне.

В данной работе проведено экспериментальное исследование энергетических, ориентационно-поляризационных и температурных зависимостей дифракционной эффективности объемных голограмм, образующихся в фоторефрактивных кристаллах при импульсной записи. Проведенные исследования позволяют предложить качественную модель процесса формирования импульсных голограмм в кристаллах типа BSO.

В основу методики проведенных нами исследований было положено явление дифракции с поворотом плоскости поляризации дифрагированного света на 90° по отношению к прошедшему лучу, имеющее место в кубических фоторефрактивных кристаллах в том случае, если голограмма обусловлена фоторефрактивным эффектом [5]. Если же в процессе записи голограммы не индуцируется анизотропия оптических свойств среды, а происходит модуляция лишь скалярных ее параметров, таких как показатель преломления n или показатель поглощения α , то состояние поляризации дифрагированного света будет иным. Таким образом, анализ состояния поляризации дифрагированного света позволяет судить о физической природе записанной голограммы и выделить вклад различных механизмов (фоторефрактивного, фотохромного и др. см., например, [6]) в процесс ее записи.

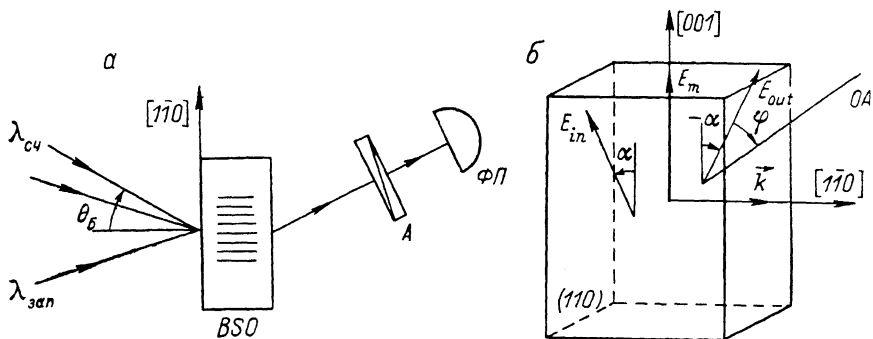


Рис. 1. Схема оптической части экспериментальной установки (а) и геометрия эксперимента (б).

А — выходной анализатор, ФП — фотоприемник, ОА — ось анализатора, E_{in} — поляризация считывающего света на передней грани кристалла, E_m — в середине, E_{out} — на выходе из кристалла. Вектор решетки — $\vec{k} \parallel [110]$.

Схема оптической части экспериментальной установки представлена на рис. 1, а, а геометрия эксперимента, в которой имеет место дифракция с поворотом плоскости поляризации, — на рис. 1, б. Запись голограммы осуществлялась сходящимися лучами зеленого света $\lambda_{зап} = 0.53$ мкм примерно равной интенсивности, так что контраст интерференционной картины $m \approx 1$. Вектор решетки параллелен кристаллографической оси $[110]$. Импульс записывающего света имел длительность $\tau_u \approx 30$ нс, а его энергия варьировалась в пределах до 2 мДж, что соответствовало экспозиции $W = E_u / \sigma \leq 20$ мДж/см², где $\sigma = 0.1$ см² — площадь поперечного сечения записывающего луча. Считывание производилось лучом света непрерывного He—Ne лазера на длине волны $\lambda_{сч} = 0.63$ мкм, падающим на кристалл под соответствующим углом Брэгга, поляризация которого была выставлена параллельно оси $[001]$ в середине образца (рис. 1, б). При этом плоскость поляризации считывающего света на передней грани образца составляла с осью $[001]$ угол $\alpha = \rho d / 2$, а на выходе из кристалла угол $-\alpha = -\rho d / 2$ с той же осью, где ρ — удельная оптическая активность кристалла. Как будет показано ниже, дифрагировавший на импульсной голограмме свет может быть разложен на две составляющие: поляризация одной из них совпадает с поляризацией прошедшего, а поляризация другой ей ортогональна. Мы назовем их для краткости *i*- и *a*-составляющей соответственно. Таким образом, плоскость поляризации *i*-составляющей развернута на угол $\rho d / 2$ по отношению к оси $[001]$, а плоскость поляризации *a*-составляющей на угол $-(\rho d / 2 + \pi / 2)$ к той же оси.

В качестве фоторефрактивных кристаллов нами были использованы кристаллы типа силленитов, а именно $Bi_2(Si, Ge, Ti)O_{20}$, вырезанные

вдоль плоскости (110). В отдельных случаях использовался также и срез (100), в котором, как известно, исключен поперечный линейный электрооптический эффект.

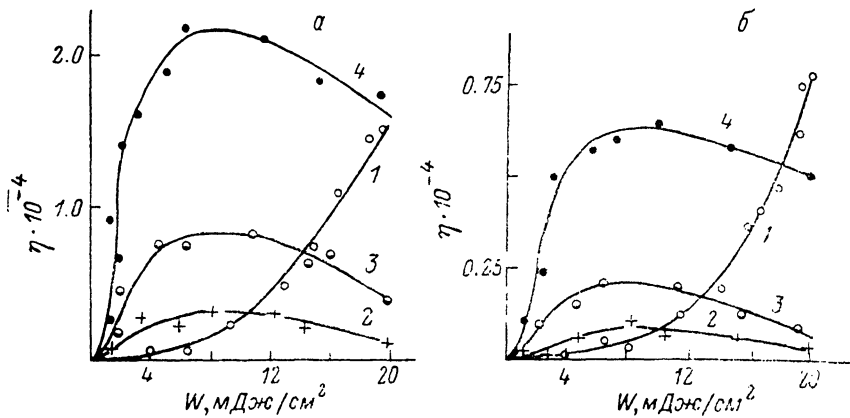


Рис. 2. Дифракционная эффективность $\eta = I_d(\varphi) / I_{\text{пад}}$.

$I_d(\varphi)$ — интенсивность дифрагированного света в момент окончания действия записывающего импульса на выходе анализатора, развернутого на угол φ ; $I_{\text{пад}}$ — интенсивность падающего считывающего луча. а — кристалл ВТО, б — кристалл ВСО. $\varphi = 0$ (1), 90° (2–4). 1 — $k = 2.36 \cdot 10^4$, $3.73 \cdot 10^4$, $6.7 \cdot 10^4$; 2 — $2.36 \cdot 10^4$, 3 — $3.73 \cdot 10^4$; 4 — $6.7 \cdot 10^4$ см^{-1} .

2. Результаты экспериментов

а. При исследовании энергетических и поляризационных свойств импульсных голограмм нами установлено следующее.

Во-первых, быстрая компонента дифрагированного света содержит как i -, так и a -составляющую. Зависимости интенсивности каждой из них от

экспозиции записи представлены на рис. 2, а, б. Данные зависимости носят качественно различный характер. В то время как i -составляющая быстрой компоненты монотонно возрастает с ростом экспозиции, a -составляющая возрастает лишь при малых экспозициях $W \leq 6$ мДж/см², после чего входит в насыщение и затем спадает.

Во-вторых, как показывает рис. 3, дифрагированный свет при всех

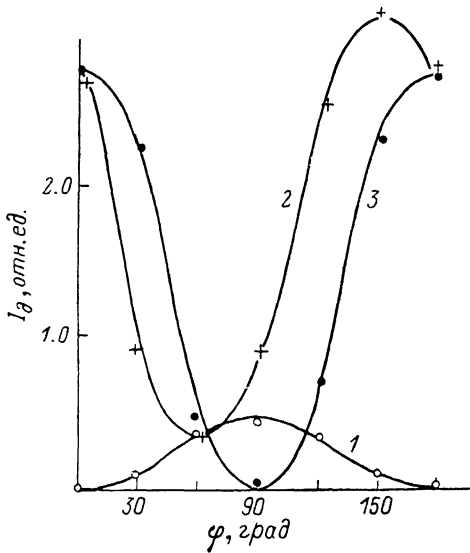


Рис. 3. Зависимость интенсивности быстрой компоненты на выходе анализатора от угла его разворота φ .

1 — экспозиция записи $W = 2$ мДж/см², $k = 3.73 \cdot 10^4$ см^{-1} ; 2 — то же при $W = 20$ мДж/см²; 3 — то же в срезе (100) кристалла.

энергиях записи остается поляризованным почти линейно, однако ориентация плоскости поляризации изменяется с изменением W . Действительно, кривые 1, 2 хорошо аппроксимируются зависимостью вида $I_p \sim \cos^2(\varphi - \varphi_0)$, что и характерно для линейно-поляризованного света, причем положение максимума на этой зависимости как раз и указывает на ориентацию его плоскости поляризации. На пространственных частотах $k \leq 4 \cdot 10^4$ см^{-1} при больших экспозициях $W \geq 20$ мДж/см² она почти соответствует дифракции без поворота плоскости поляризации, а при малых экспозициях $W \leq 6$ мДж/см² дифракции с поворотом.

В-третьих, нами также наблюдалась дифракция при импульсной записи в срезе (100) кристалла BSO, в котором, как известно, при записи непрерывным лазером голограмма не формируется, поскольку в такой геометрии отсутствует поперечный линейный электрооптический эффект. При этом поляризация дифрагированного света совпадала с поляризацией

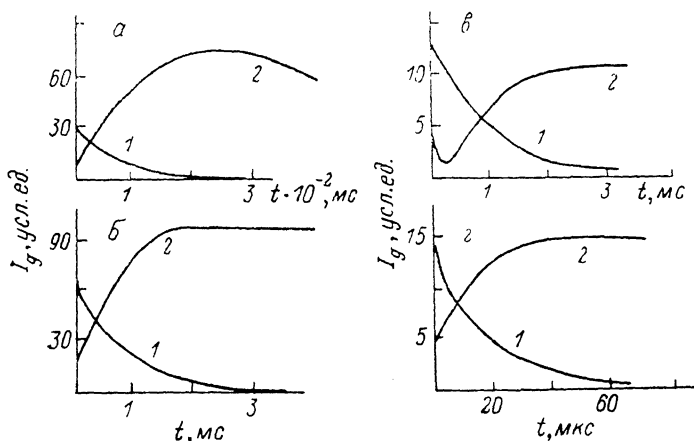


Рис. 4. Осциллограммы интенсивности дифрагированного света.

(1) - и (2) - составляющие в кристаллах ВТО (а, б) и BSO (е, з) при комнатной температуре (а, е) и 100 °С (б, з).

прошедшего (рис. 3, 3), а зависимость интенсивности быстрой компоненты от экспозиции имела вид, аналогичный кривой 1 на рис. 2, б.

В-четвертых, при изменении пространственной частоты в пределах от 400 до 1200 мм⁻¹ интенсивность *i*-составляющей остается практически неизменной, в то время как *a*-составляющая нарастает приблизительно пропорционально k^2 (рис. 2).

б. В [4] было отмечено, что характерное время спада *i*-составляющей в кристаллах ВТО составляет величину порядка $T_d \approx 200$ мс и совпадает со временем нарастания T_g медленной фоторефрактивной решетки $T_g \approx T_d$. Проведенные исследования показали также, что при нагреве кристалла от

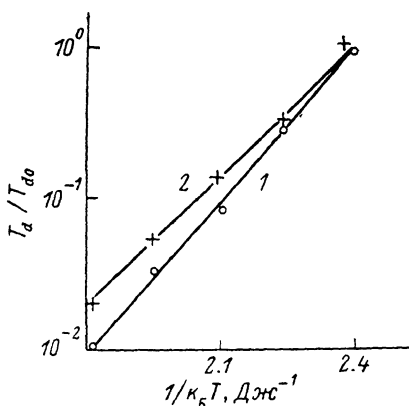


Рис. 5. Зависимость времени спада T_d *i*-составляющей от температуры.

1 - кристалл ВТО, 2 - кристалл BSO. T_{d0} - значение T_d при комнатной температуре.

комнатной температуры до 100 °С процессы стирания и нарастания резко ускоряются (4, а—з). При сохранении качественного вида осциллограмм T_d уменьшается в указанном температурном диапазоне почти на два порядка. Зависимость $T_d (1/k_B T)$ представлена на рис. 5, причем следует отметить, что при всех температурах отмеченное выше совпадение времен спада и нарастания имеет место.

В кристаллах BSO осциллограммы имеют качественно аналогичный вид (рис. 4, в, з), не считая некоторого спада *a*-составляющей за времена порядка 50 нс при комнатной температуре. К сказанному следует добавить и то, что осциллограммы интенсивности дифрагированного света, наблю-

давшиешие нами в срезе (100) кристалла BSO, совершенно аналогичны кривым 1 на рис. 4, в, г, а медленная компонента в этом срезе отсутствует вовсе.

3. Обсуждение результатов

Энергетические и поляризационные зависимости (раздел 2), на наш взгляд, свидетельствуют о том, что в кристаллах типа BSO в рассматриваемых условиях формируются две голограммы: первая — нефоторефрактивная, не связанная с пространственным перераспределением фотовозбужденных зарядов; вторая — обычная фоторефрактивная. Амплитуды этих двух голографических решеток A_{npr} и A_{pr} по-разному ведут себя при изменении экспозиции записи (рис. 2). Считывающий свет дифрагирует независимым образом на каждой из них, в результате чего при малых экспозициях, когда $A_{npr} \ll A_{pr}$ доминирует a -составляющая и дифрагированный свет поляризован ортогонально прошедшему. При больших же экспозициях, когда $A_{npr} \geq A_{pr}$, он поляризован под углом $\beta = \arctg A_{pr}/A_{npr}$ к плоскости поляризации прошедшего света. Это последнее обстоятельство подтверждается также и рис. 3, из которого видно, что при $A_{pr}/A_{npr} \approx 1/\sqrt{3}$ $\beta \approx 30^\circ$.

Отметим, что зависимость амплитуды быстрой компоненты от экспозиции исследовалась также в работе [2] и имела вид кривой, нарастающей значительно быстрее, чем W^2 , с последующим замедлением скорости роста. Однако авторы этой работы использовали такую геометрию эксперимента, в которой максимизируется энергообмен между записывающими лучами, а дифракция с поворотом плоскости поляризации невозможна. Следовательно, невозможно также и разделение составляющих. В силу этого авторы указанной работы наблюдали по сути их сумму, которая, как показывают и наши исследования, экстремума не имеет.

Нуждается в анализе и самый факт существования фоторефрактивной голограммы, сформированной за время порядка 30 нс. Действительно, расстояние L , на которое в среднем за время действия импульса успевают продиффундировать подвижные носители, равно, если опираться на традиционное значение подвижности $\mu = 3 \cdot 10^{-2}$ см²/с·В

$$L = \sqrt{D\tau_u} = \sqrt{(k_B T / e) \mu \tau_u} \approx 10^{-2} \text{ мкм}, \quad (1)$$

что почти на два порядка меньше типичного значения пространственного периода решетки $\Lambda = 1$ мкм. Однако, как видно из рис. 2, и сам вклад фоторефрактивной части в общую величину быстрой компоненты на пространственных частотах $k \leq 4 \cdot 10^4$ см⁻¹ довольно мал. Кроме того, формирование пространственного заряда происходит в условиях, далеких от установившегося генерационно-рекомбинационного равновесия, ибо длительность импульса $\tau_u \ll \tau$ времени жизни фотоэлектронов ($\tau \approx 5 \cdot 10^{-6}$ с), и, следовательно, в этом принимает значительное количество свободных электронов $n \sim N_{ph}$, где $N_{ph} \sim (5 \div 10) \cdot 10^{16}$ см⁻³ — число поглощенных фотонов. Количественно оценить совместное действие указанных факторов можно на основе следующей системы уравнений:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = g - \frac{1}{e} \frac{\partial j}{\partial z}, \quad j = eD \frac{\partial n}{\partial z}, \quad E_{sc} = - \frac{1}{\epsilon} \int j dt, \quad (2)-(4)$$

где n — концентрация фотовозбужденных электронов, j — плотность тока, E_{sc} — поле голограммы, D — коэффициент диффузии, g — скорость генерации электронов

$$g = \alpha^2 I_0 / \hbar \omega + (\alpha \beta I_1 / \hbar \omega) \cos kz = g_0 (1 + m \cos kz). \quad (5)$$

Здесь I_0 — средняя интенсивность интерференционной картины, $I_1 = m I_0$, $m g_0 = g_1$.

в первом уравнении, исходя из того, что $\tau_u \ll \tau$, мы пренебрегли комбинационным членом $-n/\tau$, а во втором пренебрегли дрейфовым током. Последнее допущение основано на том, что наблюдаемое в эксперименте максимальное значение дифракционной эффективности фоторефрактивной голограммы много меньше того, которое должно быть в условиях установившегося диффузионно-дрейфового равновесия, когда $E_{sc} = E_D = (k_B T/e) k$. Решая совместно (2), (3), получаем

$$n(z, t) = g_1 t + g_1 T_D (1 - \exp(-t/T_D)) \cos kz, \quad T_D = 1/k^2 D, \quad (6)$$

а комбинируя (3), (4) и (6), получаем

$$E_{sc} = (e g_1 / \varepsilon k) (T_D (1 - \exp(-t/T_D)) - t). \quad (7)$$

При $t/T_D \gg 1$ эта формула дает известное выражение [7]

$$E_{sc} = (-e/\varepsilon k) g_1 t, \quad (8)$$

описывающее линейный этап записи голограммы, на котором корень квадратный из дифракционной эффективности $\sqrt{\eta}$ пропорционален экспозиции $\sqrt{\eta} \sim W$. Исходя из традиционного значения для подвижности фотоэлектронов в BSO $\mu = 3 \cdot 10^{-2} \text{ см}^2/\text{с} \cdot \text{В}$, можно численно оценить время диффузии $T_D = 1/k^2 D$, которое оказывается много больше длительности импульса $T_D \approx 1$ мкс. При $t/T_D \ll 1$ из (7) имеем

$$E_{sc} = -e g_1 t^2 / 2 \varepsilon k T_D, \quad (9)$$

что соответствует в случае непрерывной записи начальному нелинейному этапу формирования голограммы. В случае импульсной записи, полагая в (9) $t = \tau_u$, получаем выражение для амплитуды быстрой фоторефрактивной решетки

$$E_{sc} = (-e \tau_u / 2 \varepsilon k T_D) g_1 \tau_u. \quad (10)$$

В этом случае увеличение экспозиции достигается за счет увеличения интенсивности света I , т. е. g_1 , при фиксированной длительности τ_u и выражение (10) описывает линейный режим, в котором, однако, чувствительность кристалла отличается от обычной (см. (8)) в $\tau_u/2T_D$ раз. Последнее выражение описывает также и наблюдаемый в эксперименте рост дифракционной эффективности η с ростом пространственной частоты k , ибо $T_D \sim 1/k^2$. Используя совместно (10) и известное выражение для дифракционной эффективности объемной фазовой голограммы при $\eta \ll 1$ [8]

$$\sqrt{\eta} = (\pi d / \lambda \cos \theta_B) \delta n, \quad (11)$$

где d — толщина голограммы, λ — длина волны считывающего света, δn — амплитуда вариаций показателя преломления, получаем окончательное выражение для дифракционной эффективности объемной импульсной фоторефрактивной голограммы

$$\sqrt{\eta} = \frac{\pi d}{\lambda \cos \theta_B} \frac{n_0^3 r}{2} \frac{e \tau_u}{2 \varepsilon k T_D} g_1 \tau_u. \quad (12)$$

Выражение (12) позволяет, исходя из характерных значений параметров использованных образцов кристаллов BSO ($\alpha \approx 1.5 \text{ см}^{-1}$, $d \approx 2.5 \text{ мм}$, $k \approx 3.7 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$), оценить значение экспозиции W_0 , при которой дифракционная эффективность импульсной фоторефрактивной голограммы достигает 1 % $W_0^{\text{теор}} \approx 15 \text{ мДж/см}^2$, в то время как, экстраполируя начальный линейный участок экспериментальной зависимости $\sqrt{\eta} \sim W$ (рис. 2), получаем совпадающее по порядку величины значение $W_0^{\text{эксп}} \approx 70 \text{ мДж/см}^2$. Кристаллы ВТО обладают заметно большей по сравнению с BSO чувствительностью к импульсной записи, для них $W_0^{\text{эксп}} \approx 30 \text{ мДж/см}^2$, что может быть связано как с отличием в коэффициенте поглощения α , так и в коэффициенте диффузии D .

Рассмотрим далее вопрос о том, какова возможная физическая природа, нефоторефрактивной решетки. Ранее нами была выдвинута гипотеза о том, что ее существование связано с наличием в кристаллах типа силленитов мелких уровней прилипания [4] с глубиной залегания $\Delta E = 0.3 \div 0.5$ эВ и концентрацией $N_i^- \sim 10^{16} \text{ см}^{-3}$ [9]. Действительно, практически одновременное фотовозбуждение в зону проводимости значительного числа $n \sim 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ электронов должно приводить, согласно Друде—Лоренцу, к вариациям показателя преломления, включая его действительную и мнимую части. Последующий захват свободных электронов на мелкие уровни прилипания также изменяет коэффициент поглощения считывающего света

$$\alpha = \sigma_n N_i^- + \sigma_p N_D^+ \quad (13)$$

Выражение, аналогичное (13), фигурирует, например, в [6]. Здесь σ_n — сечение фотоионизации для электронов на мелком уровне; σ_p — сечение фотоионизации для дырок; N_i^- — концентрация электронов, захваченных на мелком уровне; N_D^+ — концентрация ионизованных доноров. В максимумах интерференционной картины, где скорость фотогенерации электронов максимальна, происходит значительное изменение как N_i^- , так и N_D^+ по сравнению с их равновесными значениями в темноте, ибо

$$N_D^+/N_A \sim 1 + N_{ph}/N_A \sim 1 \div 10, \quad (14)$$

N_A — концентрация исходно ионизованных доноров. В минимумах же интерференционной картины значения N_i^- и N_D^+ практически не изменяются и тем самым в кристалле формируется пространственно-неоднородное распределение показателя поглощения

$$\alpha = \alpha_0 + \alpha_1 \cos kz_0 \quad (15)$$

Глубина модуляции показателя поглощения, по данным работы [4], может составлять от единиц до десятков процентов, что в свою очередь может повлечь за собой и вариации вещественной части показателя преломления

$$n = n_0 + \delta n \cos kz \quad (16)$$

Выражения (15), (16) описывают нефоторефрактивную решетку, на которой свет дифрагирует без изменения положения плоскости поляризации, что и наблюдается в эксперименте.

Эта гипотеза согласуется с результатами, полученными при исследовании температурных зависимостей импульсной записи. Поскольку, согласно нашему предположению, нефоторефрактивная голограмма записана в виде периодического вдоль оси распределения заселенности мелкого уровня прилипания, лежащего на глубине ΔE , относительно времени стирания такой голограммы T_d можно утверждать, что

$$T_d \sim \exp(\Delta E/k_B T) \text{ или } \ln T_d \sim \Delta E/k_B T, \quad (17)$$

что и подтверждается рис. 5, на основании которого можно также численно оценить глубину залегания ΔE этого уровня, которая оказывается равной 0.48 эВ для ВТО и 0.42 эВ для BSO, что, как было отмечено, вполне соответствует литературным данным.

Совпадение же времен спада и нарастания медленной фоторефрактивной компоненты наводит на предположение о том, что здесь мы сталкиваемся с так называемым эффектом скрытой записи [10, 11], с той лишь разницей, что проявление скрытого изображения связано не с воздействием считывающего света и дрейфом во внешнем поле, как в [11], а с термической генерацией и последующей диффузией, что и приводит к формированию долгоживущей фоторефрактивной голограммы, обусловленной, как обычно, нескомпенсированным зарядом глубоких доноров.

Изложенные в данной работе результаты позволяют, на наш взгляд, сделать следующие выводы.

1. Решетка, формируемая в кристаллах типа силленитов под действием мощного импульсного излучения за времена порядка нескольких десятков наносекунд, включает в себя как фоторефрактивную, так и нефоторефрактивную части, что позволяет в какой-то степени согласовать позиции авторов [1, 2]. Фоторефрактивная решетка дает не слишком значительный вклад в быструю компоненту записи, и процесс ее формирования может быть объяснен без изменения традиционных представлений с значения подвижности носителей в данных материалах.

2. Нефоторефрактивная решетка может быть связана с быстрым переселением значительного количества фотоэлектронов с глубоких донорных уровней на мелкие и в зону проводимости. Нефоторефрактивная решетка служит также и своего рода скрытым изображением, термическое проявление которого впоследствии обуславливает появление медленной фоторефрактивной компоненты процесса записи голограммы.

В заключение авторы приносят благодарность М. В. Красиньковой и В. В. Прокофьеву за предоставленные образцы кристаллов.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Ferrier J., Gazengel J., Nguen Phu X., Rivoire G. // Opt. Comm. 1986. V. 58. N 5. P. 343—348.
- [2] Lessaux G., Roosen G., Brun A. // Opt. Comm. 1986. V. 56. N 6. P. 374—378.
- [3] Valley G. // J. Quant. Electron. 1983. V. 19. N 11. P. 1637—1645.
- [4] Петров М. П., Кампилин А. А., Хромов А. Л. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. № 23. С. 2152—2157.
- [5] Petrov M. P., Stepanov S. I., Miridonov S. V., Kulikov V. V. // Opt. Comm. 1979. V. 31. N 3. P. 301—305.
- [6] Smirl A., Valley G., Bohnert K., Boggess J. // IEEE J. Quant. Electron. 1988. V. 24. N 2. P. 289—303.
- [7] Петров М. П., Степанов С. И., Хоменко А. В. Фоточувствительные электрооптические среды в голографии и оптической обработке информации. Л.: Наука, 1983. 268 с.
- [8] Кольер Р., Беркхарт К., Лин Л. Оптическая голография. М.: Мир, 1973. 686 с.
- [9] Peltier M., Micheron F. // J. Appl. Phys. 1977. V. 48. N 9. P. 3683—3690.
- [10] Асратов В. Н., Ильинский А. В., Мельников М. Б. // ФТТ. 1983. Т. 25. № 7. С. 2163—2168.
- [11] Петров М. П. и др. // ЖТФ. 1985. Т. 55. № 11. С. 2247—2249.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Поступило в Редакцию
15 августа 1989 г.