

## НЕЛИНЕЙНЫЙ ОТКЛИК ФОТОРЕФРАКТИВНЫХ ТАНТАЛАТА И НИОБАТА ЛИТИЯ НА ЗВУКОВЫХ ЧАСТОТАХ

П. А. Прудковский, О. В. Скугаревский, А. Н. Пенин

Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова  
119899, Москва, Россия

Поступила в редакцию 9 апреля 1997 г.

Экспериментально обнаружено усиление осцилляций интенсивности накачки на частотах от 100 Гц до 1 кГц при фотоиндуцированном рассеянии света и параметрическом рассеянии голографического типа в фоторефрактивных танталате и ниобате лития. Проанализированы возможные пути объяснения наличия фоторефрактивного отклика этих кристаллов на временах  $10^{-2}$ – $10^{-3}$  с, которые на пять порядков меньше максвелловского времени.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Явление фоторефракции было обнаружено еще в шестидесятые годы [1, 2], однако интерес к фоторефрактивным средам сохранился и в наши дни, что связано с огромным разнообразием их свойств. Например, голографическая решетка, записанная в ниобате лития, может храниться месяцами [3], тогда как характерное время фоторефрактивного отклика в титанате бария составляет нано- и пикосекунды [4]. Согласно общепринятой теории фоторефракции, предложенной еще Глассом [5], при освещении фоторефрактивных кристаллов в них возникает макроскопический ток, перераспределяющий плотность электрических зарядов. Электростатическое поле разделенных зарядов за счет электрооптического эффекта меняет показатель преломления среды. Эта теория предполагает наличие единственного временного параметра, характеризующего все фоторефрактивные процессы, — максвелловского времени

$$\tau_M = \varepsilon_{st}/4\pi\sigma, \quad (1)$$

где  $\varepsilon_{st}$  — диэлектрическая проницаемость среды, а  $\sigma = \sigma_T(1 + I/I_s)$  — ее проводимость, причем масштаб ее изменения под действием освещения определяется параметром  $I_s$  [6].

Однако время от времени появляются работы, свидетельствующие о наличии фоторефрактивного отклика с характерными временами, сильно отличающимися от максвелловского [4, 7, 8]. В нашей работе также обнаружен фоторефрактивный отклик танталата и ниобата лития, легированных атомами меди, на характерных частотах  $f \sim 0.1$ – $1$  кГц, в то время как максвелловские времена в таких кристаллах составляют десятки минут.

## 2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

При попадании когерентного пучка света в фоторефрактивную среду через характерное время в ней может возникнуть широкоугловое вырожденное по частоте рассеяние, которое обычно связывают с оптическим повреждением (optical damage) и стремятся от него избавиться, так как оно сильно ослабляет накачку. Это — фотоиндуцированное рассеяние света (ФИРС), которое объясняется записью и самосогласованным усилением большого количества голографических решеток [9]. В анизотропных кристаллах при выполнении некоторых условий в направлениях, образующих четко выраженный конус, форма которого определяется условием четырехволнового пространственного синхронизма  $2\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_{s_2}$  (где индексы  $p$  и  $s$  означают соответственно моду накачки и рассеянного излучения), может наблюдаться резкое возрастание интенсивности рассеянного света. Этот эффект объясняют тем, что в этих направлениях на одной голографической решетке взаимодействуют с накачкой не одна, а две моды рассеянного света, и называют параметрическим рассеянием голографического типа (ПРГТ) [10].

При исследовании временных характеристик фоторефрактивного отклика нами рассматривались ФИРС  $o-e$ -типа и ПРГТ  $oo-ee$ -типа в  $\text{LiTaO}_3 : \text{Cu}$  и ПРГТ  $ee-oo$ -типа в  $\text{LiNbO}_3 : \text{Cu}$ . Интенсивность накачки была модулирована на одной или двух частотах в диапазоне от 100 Гц до 1 кГц с малой (не больше 10%) глубиной модуляции. Величина фоторефрактивного отклика кристаллов на этих частотах определялась по изменению глубины модуляции интенсивности света в процессе рассеяния.

Рассмотрим схему экспериментальной установки, представленную на рис. 1. Обычно поляризованный пучок гелий-кадмиевого лазера ( $\lambda = 442$  нм) для танталата лития или необыкновенно поляризованный пучок аргонового лазера ( $\lambda = 488$  нм) для ниобата лития, проходя через электрооптический модулятор, падает нормально на срез  $X-Z$  кристалла. Два фотодетектора регистрировали интенсивности накачки и рассеянного света. ЭВМ, сопряженная с измерительной аппаратурой с помощью крейта КАМАК, обрабатывала информацию. Глубина модуляции интенсивностей света в обоих каналах определялась по величинам фурье-компонент на частотах модуляции, причем для более точного выделения регулярной модуляции из шума нами использовался не спектр сигнала, а спектр флуктуаций интенсивности, являющийся фурье-преобразованием автокорреляционной функции интенсивностей света, которые были нормированы на квадрат среднего значения. На рис. 2 показан типичный график автокорреляционной функции интенсивностей накачки и рассеянного излучения, модулированных на двух частотах,

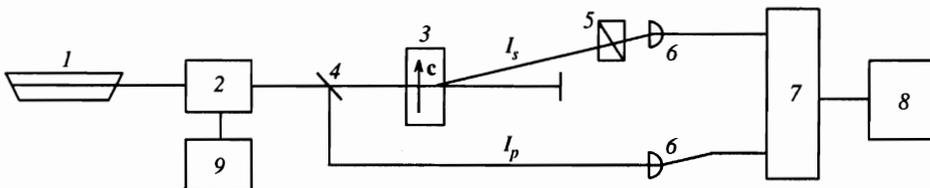


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — аргоновый или гелий-кадмиевый лазер; 2 — электрооптический модулятор; 3 — фоторефрактивный кристалл ниобата или танталата лития, легированный атомами меди ( $c$  — оптическая ось); 4 — полупрозрачное зеркало; 5 — анализатор; 6 — фотодетекторы; 7 — крейт КАМАК; 8 — ЭВМ; 9 — генератор электрических импульсов

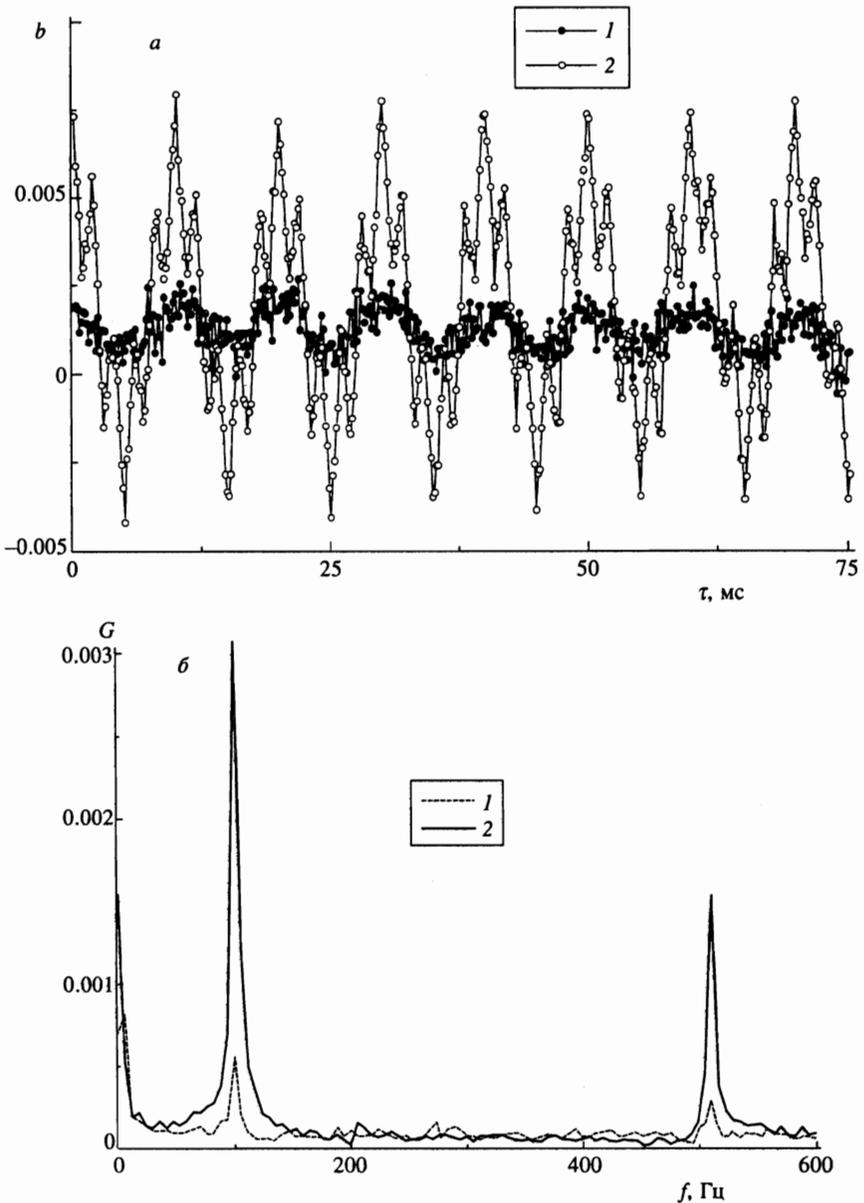


Рис. 2. Типичный пример автокорреляционной функции (а) и спектра флуктуаций (б) интенсивности накачки, модулированной на частотах 100 Гц и 500 Гц (1), и интенсивности света, рассеянного в результате ПРГТ  $oo-ee$ -типа в  $LiTaO_3:Cu$  (2)

и их фурье-спектр. По отношению амплитуд фурье-компонент на частотах модуляции определялся коэффициент, характеризующий величину фоторефрактивного отклика на

этих частотах:

$$K(f) = \sqrt{G_s(f)/G_p(f)}, \quad (2)$$

где

$$G(f) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} b(\tau) e^{2\pi i f \tau} d\tau$$

— спектр флуктуаций, а

$$b(\tau) = \langle I(t)I(t + \tau) \rangle / \langle I(t) \rangle^2$$

— нормированная автокорреляционная функция интенсивности света. Значение  $K(f) = 1$  соответствует равенству относительных амплитуд модуляций интенсивностей накачки и рассеянного света, т.е. обычной дифракции на стационарной голографической решетке. Однако на рис. 2 ясно видно, что глубина модуляции интенсивности рассеянного излучения значительно больше, чем накачки, а это означает, что фоторефрактивная голографическая решетка успевает меняться при изменениях интенсивности накачки, усиливая тем самым модуляцию рассеянного излучения.

### 3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

На рис. 3 показаны зависимости интенсивности рассеяния и коэффициента преобразования глубины модуляции интенсивности накачки от времени в процессе записи ПРГТ в ниобате и танталате лития. К концу первого часа для танталата лития и к концу второго часа для ниобата лития интенсивность рассеяния на обоих графиках прекращает расти и выходит на приблизительно постоянный уровень, т.е. процесс записи голографических решеток достигает режима насыщения, в котором действие электростатического поля разделенных зарядов уравнивает фотогальванический ток. Время, за которое процесс записи ПРГТ выходит на режим насыщения, имеет тот же порядок, что и максвелловское время  $\tau_M \sim 10^3$  с. Однако в то же время голографическая решетка успевает усилить осцилляции накачки на частотах порядка сотен герц, т.е. период осцилляций  $T \sim 10^{-2}$  с на пять порядков меньше максвелловского времени.

Зависимости коэффициента преобразования глубины модуляции от времени для ниобата и для танталата лития имеют различный характер. На рис. 3а для  $\text{LiNbO}_3 : \text{Cu}$  коэффициент  $K(t)$  достигает максимального значения в середине динамического режима, при котором происходит быстрый рост интенсивности рассеяния, а в режиме насыщения убывает до единицы. Таким образом, в ниобате лития голографическая решетка успевает реагировать на изменения интенсивности накачки только в тот период, когда она и без этого быстро растет, а в режиме насыщения, как и следовало ожидать, становится неизменной. Однако на рис. 3б для танталата лития зависимость  $K(t)$  имеет существенно иной характер. У нее нет четко выраженных максимумов, как на рис. 3а; в течение всего динамического режима коэффициент преобразования не сильно отличается от значения  $K \simeq 1.4$ . Зато в режиме насыщения коэффициент преобразования не только не убывает до единицы, но и возрастает до значения  $K \simeq 2$ .

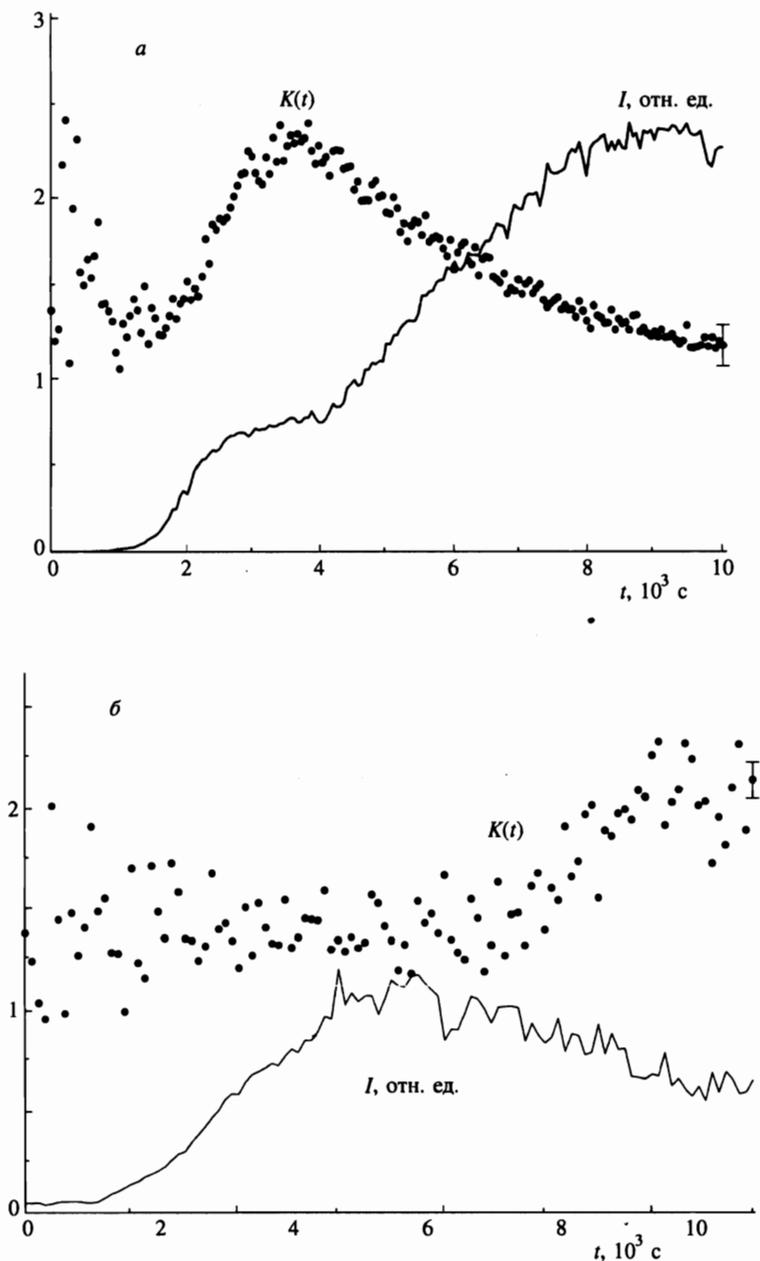


Рис. 3. Зависимости от времени интенсивности рассеяния и коэффициента преобразования глубины модуляции интенсивности накачки на частотах  $f = 300$  Гц (а) и  $f = 100$  Гц (б) в процессе записи ПРТГ  $ee-oo$ -типа в  $\text{LiNbO}_3 : \text{Cu}$  (а) и ПРТГ  $oo-ee$ -типа  $\text{LiTaO}_3 : \text{Cu}$  (б)

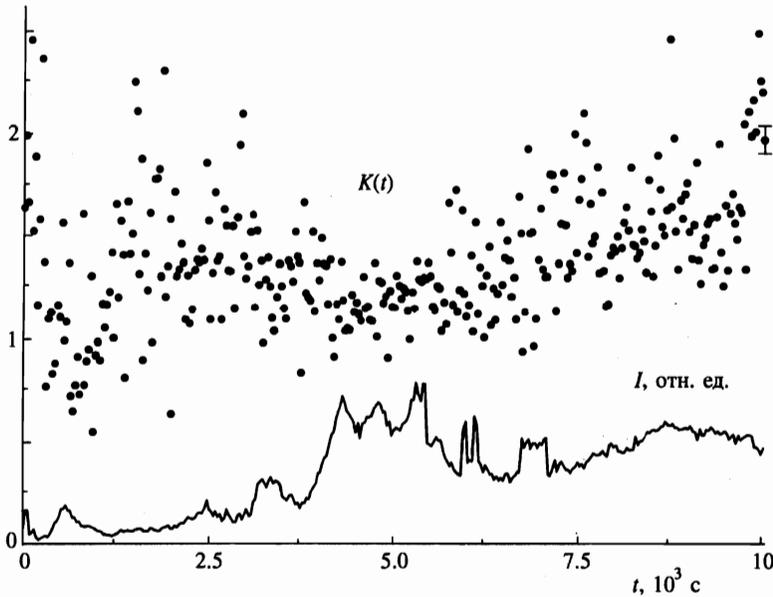


Рис. 4. Зависимости от времени интенсивности рассеяния  $I(t)$  и коэффициента преобразования глубины модуляции интенсивности накачки  $K(t)$  на частоте  $f = 100$  Гц в процессе записи ФИРС  $\sigma$ - $e$ -типа в  $\text{LiTaO}_3$ : Cu

Таким образом, фотоиндуцированная голографическая решетка в танталате лития даже в стационарном состоянии успевает реагировать на изменения накачки на временах, много меньших максвелловского.

На рис. 4 показаны временные зависимости интенсивности рассеяния и коэффициента преобразования осцилляций при ФИРС в танталате лития. Как можно видеть из графика, для ФИРС бессмысленно вводить понятия динамического режима и режима насыщения, так как интенсивность рассеяния испытывает сильные перепады на протяжении всего времени наблюдения. Это связано, во-первых, с конкуренцией ФИРС и ПРГТ, в результате которой большая часть интенсивности накачки отбирается ПРГТ, во-вторых, с возможностью электрических пробоев в кристалле и, наконец, с тем, что энергообмен при взаимодействии двух волн в стационарных условиях запрещен [11]. Видимо, по этим же причинам значения коэффициента преобразования глубины модуляции интенсивности имеют сильный разброс, хотя в среднем, как и для ПРГТ, несомненно больше единицы.

Рассмотрим, наконец, рис. 5, на котором показаны коэффициенты преобразования глубины модуляции интенсивности накачки сразу на двух (причем некротных) частотах,  $f_1 = 100$  Гц и  $f_2 = 430$  Гц, при ПРГТ в  $\text{LiTaO}_3$ : Cu. Оказывается, в случае двух частот модуляции картина сильно усложняется: хотя интенсивность рассеяния существенно меняется только в течение первого часа после начала записи, как на рис. 3б, коэффициенты преобразования испытывают сильные изменения в течение восьми часов и только после этого выходят на приблизительно постоянный уровень  $K_1 \approx K_2 \approx 1.5$ . По-видимому, процессы усиления осцилляций интенсивности на двух частотах взаимосвязаны и не могут рассматриваться независимо. Иначе трудно было бы объяснить тот факт, что для достижения стационарной ситуации требуется время, почти на по-

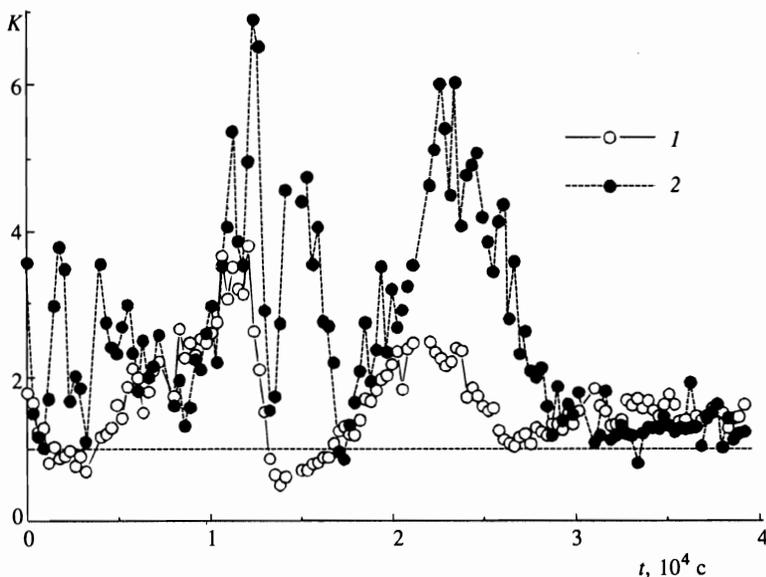


Рис. 5. Зависимость от времени коэффициента преобразования глубины модуляции интенсивности накачки  $K(t)$  на частотах  $f_1 = 100$  Гц (1) и  $f_2 = 430$  Гц (2) в процессе записи ПРГТ  $oo-ee$ -типа в  $LiTaO_3$ : Cu

рядок больше, чем время записи решеток, не говоря уж о том, что два раза в течение времени наблюдения в тот момент, когда один из коэффициентов преобразования имеет локальный максимум, другой оказывается меньше единицы (т. е. относительная амплитуда осцилляций уменьшается), чего не наблюдалось на предыдущих графиках.

Завершая обсуждение полученных экспериментальных данных, необходимо отметить, что при исследовании временных зависимостей коэффициента преобразования глубины модуляции интенсивности полностью отсутствует повторяемость результатов: две зависимости, полученные в одних и тех же условиях, могут иметь существенно разные черты за исключением того факта, что коэффициент усиления почти всегда больше единицы. Это говорит о стохастической природе механизма усиления осцилляций интенсивности на этих частотах.

Итак, полученные нами результаты позволяют сделать следующие выводы.

1. Усиление осцилляций (или флуктуаций) интенсивности накачки при рассеянии в фоторефрактивных танталате и ниобате лития наблюдается на частотах от 100 Гц до 1 кГц. На больших частотах уверенно зарегистрировать усиление осцилляций нам не удалось.

2. Эффект усиления осцилляций наблюдается в танталате лития в любых условиях, тогда как в ниобате лития он имеет место лишь в течение динамического режима, при котором происходит быстрый рост голографических решеток, т. е. в нестационарном случае.

3. Усиление осцилляций при ФИРС и ПРГТ свидетельствует о том, что голографические решетки, записанные в кристалле, меняются вместе с изменениями интенсивности накачки. В результате осцилляции рассеянного излучения определяются совокупностью осцилляций интенсивности накачки и амплитуды голографической решетки.

4. Усиление осцилляций с периодом, много меньшим максвелловского времени среды, свидетельствует о существовании нового, пока что не известного механизма фоторефракции, обладающего значительно меньшим характерным временем.

5. Механизм усиления осцилляций, по-видимому, имеет стохастическую природу, приводящую к сильным флуктуациям коэффициента усиления, отсутствию повторяемости результатов и, возможно, взаимодействию процессов усиления осцилляций на разных частотах.

Рассмотрим теперь возможные объяснения наблюдаемого эффекта, основанные на результатах работ [4, 7]. В работе [4] путем записи голограмм пикосекундными импульсами в титанате бария было обнаружено наличие фоторефрактивного отклика на временах порядка десятков пикосекунд, тогда как для перераспределения электронной плотности в таком кристалле нужно не меньше наносекунды. Такой быстрый фоторефрактивный отклик был объяснен в этой работе тем, что электроны, фотовозбужденные в зону проводимости кристалла, меняют его показатель преломления за счет вклада Друде, записывая тем самым решетку на свободных носителях [4]. Эта решетка расплывается за счет диффузии электронов в зоне проводимости, т. е. время ее жизни ограничено сверху максвелловским временем. Идею о существовании решетки на свободных носителях можно использовать для объяснения эффекта усиления флуктуаций накачки. Действительно, изменение концентрации носителей в зоне проводимости происходит практически мгновенно (на временах порядка пикосекунд), т. е. решетка на свободных носителях способна мгновенно реагировать на изменение интенсивности накачки на частотах порядка сотен герц.

Другое объяснение наблюдаемого эффекта возможно на основе результатов, полученных в работе [7]. В этой работе обнаружен фотохолловский эффект, заключающийся в появлении в кристалле  $\text{LiNbO}_3 : \text{Fe}$  фотохолловского тока, перпендикулярного вектору магнитного поля и фотогальваническому току, пропорционального интенсивности освещения кристалла. По величине фотохолловского тока была определена подвижность носителей, образующих этот ток, которая оказалась на три порядка выше обычной подвижности носителей в ниобате лития. В работе высказано предположение, что измеренная подвижность соответствует нетермализованным электронам, еще не одетым в поляронную «шубу» и имеющим поэтому значительно меньшую эффективную массу и большую подвижность. Поскольку проводимость среды пропорциональна подвижности ее носителей, а концентрация нетермализованных электронов в нестационарных условиях (например, в случае флуктуаций интенсивности накачки) может возрастать, то максвелловское время (1), соответствующее нетермализованным носителям, может быть значительно меньше обычного, что также позволило бы объяснить усиление флуктуаций интенсивности света в процессе рассеяния на звуковых частотах.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Итак, в нашей работе обнаружен отклик фоторефрактивных танталата и ниобата лития на временах, на пять порядков меньших максвелловских, приводящий к нелинейному преобразованию флуктуаций интенсивности накачки. Нами предложены два возможных пути объяснения наблюдаемого эффекта, которые, в принципе, не являются взаимоисключающими. Существующая феноменологическая теория фоторефракции, успешно описывающая большинство фоторефрактивных процессов (например, запись

голограмм, развитие ПРГТ), не учитывает существования ни решеток на свободных электронах, ни нетермализованных носителей в фоторефрактивных кристаллах. Поэтому для выяснения истинной причины усиления осциллирующей интенсивности накачки требуется развитие более последовательной теории фоторефракции, учитывающей связь различных процессов в фоторефрактивных кристаллах, которые имеют сильно различающиеся характерные времена: от времен фотовозбуждения носителей в зону проводимости (времена порядка пикосекунд) до максвелловского времени перераспределения электронной плотности в кристалле.

Авторы выражают благодарность Т. В. Лаптинской, неоднократно принимавшей участие в плодотворных дискуссиях. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 96-02-16336а).

### Литература

1. A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein, and K. Nassau, *Appl. Phys. Lett.* **9**, 72 (1966).
2. F. S. Chen, J. T. La Macchia, and D. V. Fraser, *Appl. Phys. Lett.* **13**, 223 (1968).
3. R. Sommerfeldt, R. A. Rupp, H. Vormann, and E. Kratzig, *Phys. Stat. Sol. A* **99**, K15 (1987).
4. A. L. Smirl, G. C. Valley, R. A. Mullen, K. Bokznert, C. D. Mire, and T. F. Boggess, *Opt. Lett.* **12**, 501 (1987).
5. A. M. Glass, D. von der Linde, and T. J. Negran, *Appl. Phys. Lett.* **25**, 233 (1974).
6. В. А. Пашков, Н. М. Соловьев, Е. М. Уюкин, *ФТТ* **21**, 1879 (1979).
7. А. П. Леванюк, А. Р. Погосян, Е. М. Уюкин, *ДАН* **256**, 60 (1981).
8. Y. Zhang, S. Campbell, P. Yeh, D. Shen, X. Ma, and J. Chen, *Opt. Lett.* **19**, 1397 (1994).
9. В. В. Обуховский, А. В. Стоянов, В. В. Лемешко, *КЭ* **14**, 113 (1987).
10. И. Н. Киселева, В. В. Обуховский, С. Г. Одулов, *ФТТ* **28**, 2975 (1986).
11. В. П. Кондиленко, В. Б. Марков, С. Г. Одулов, М. С. Соскин, *Укр. физ. журн.* **23**, 2039 (1978).