

БЕЛОРУССКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

УДК 535.34

**Ханун
Хайдер Камел**

**ФОТОХРОМНЫЕ ЭФФЕКТЫ В ФОТОРЕФРАКТИВНЫХ
КРИСТАЛЛАХ ТИТАНАТА ВИСМУТА**

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук
по специальности 01.04.05 - оптика

Минск, 2013

Работа выполнена в Белорусском государственном университете.

НАУЧНЫЙ РУКОВОДИТЕЛЬ –

Толстик Алексей Леонидович

доктор физико-математических наук, профессор, проректор по учебной работе Белорусского государственного университета.

ОФИЦИАЛЬНЫЕ ОППОНЕНТЫ:

Курилкина Светлана Николаевна

доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник лаборатории оптической диагностики ГНУ «Институт физики имени Б.И. Степанова НАН Беларуси».

Навныко Валерий Николаевич

кандидат физико-математических наук, доцент, декан факультета технологий УО „Мозырский государственный педагогический университет имени И.П. Шамякина”.

ОППОНИРУЮЩАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ–

Белорусский национальный технический университет.

Защита состоится 25 января 2013 г. в 14.00 на заседании совета по защите диссертаций Д 02.01.17 при Белорусском государственном университете по адресу: 220030 Республика Беларусь, г. Минск, ул. Ленинградская, 8, корпус юридического факультета, ауд. 407, e-mail: gulis@bsu.by; телефон ученого секретаря 209-57-09.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Белорусского государственного университета.

Автореферат разослан «21» декабря 2012 г.

Ученый секретарь

совета по защите диссертаций

доктор физико-математических наук профессор

И.М.Гулис

ВВЕДЕНИЕ

Достигнутый в последние два десятилетия прогресс в разработке и изучении нелинейных интерференционных и голографических систем на основе фоторефрактивных кристаллов указывает на перспективность их использования в квантовой электронике (лазеры на динамических решетках), устройствах оптической памяти, системах оптической обработки (коррекции) световых полей в реальном времени, системах передачи информации (изображений) с одних пучков на другие, при создании управляемых элементов адаптивной и волноводной оптики, голографической интерферометрии и др.

Выбранные для исследования кристаллы семейства силленитов являются признанными фоторефрактивными средами, в которых эффект фоторефракции проявляется в видимой области спектра как при небольшой (нано- и микроватты) мощности непрерывного лазерного излучения, так и при мощном (мегаватты) импульсном воздействии. Среди кристаллов семейства силленитов выделяют титанат висмута. Он обладает меньшей оптической активностью и более высоким электрооптическим коэффициентом по сравнению с другими силленитами.

Важными требованиями, предъявляемыми к фоторефрактивным материалам, является их высокая чувствительность в заданном спектральном диапазоне, возможность управления нелинейными свойствами. Поэтому актуальным является поиск новых способов управления фоторефрактивными свойствами регистрирующих сред. Одним из возможных механизмов управления областью спектральной чувствительности может служить фотохромный эффект, который приводит к перераспределению зарядов по донорным и ловушечным центрам, обратимым образом изменяя поглощение и фоторефрактивные свойства. Фотоиндуцированное поглощение света в кристаллах силленитов обычно изучается при их засветке непрерывным излучением от ламп с широким спектром, квазимонохроматических полупроводниковых светодиодов и монохроматических лазеров. Заселение при этом ловушечных уровней в запрещенной зоне позволяет существенно увеличить поглощение в «красной» и ближней ИК-области, однако требует достаточно больших экспозиций (\sim кДж/см²).

С целью расширения способов управления спектральными свойствами фоторефрактивных кристаллов представляет интерес анализ фотохромного эффекта в условиях импульсного лазерного возбуждения на различных длинах волн. При переходе к нано- и пикосекундным лазерным импульсам можно ожидать проявления нелинейных явлений, влияющих на характеристики фотохромного эффекта. Поэтому анализ временных, энергетических и спектральных особенностей фотохромного эффекта в зависимости от условий лазерного возбуждения представляется актуальным для определения оптимальных режимов управления фоторефрактивными свойствами регистрирующих сред, включая возможность расширения области их спектральной чувствительности.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Связь работы с крупными научными программами, темами

Представленные результаты исследований фотохромного эффекта в кристаллах титаната висмута получены при выполнении следующих научно-исследовательских тем: «Разработка и оптимизация методов измерения кинетических и нелинейно-оптических свойств кристаллических и молекулярных сред на основе нестационарного многоволнового смешения» государственной комплексной программы научных исследований «Кристаллические и молекулярные структуры» (2006 – 2010, гос. рег. № 20063154) «Разработка методов формирования перестраиваемых оптических микроструктур и создание на их основе дифракционных и волноводных элементов для управления световыми полями» государственной программы научных исследований «Электроника и фотоника» (2011 – 2013, гос. рег. № 20115594).

Цель и задачи исследования

Цель работы состояла в разработке метода обратимой модификации фоторефрактивных кристаллов титаната висмута с использованием дополнительного оптического излучения в видимой области спектра и установлении спектральных, энергетических и динамических закономерностей фотоиндуцированного поглощения в условиях импульсного лазерного воздействия. Для достижения указанной цели потребовалось решение следующих основных задач:

- определение светоиндуцированного изменения оптического поглощения кристаллов титаната висмута в условиях нано- и пикосекундного импульсного облучения;
- установление спектральных особенностей фотохромного эффекта в кристаллах титаната висмута при импульсном возбуждении
- исследование динамики заселения коротко- и долгоживущих ловушечных уровней и их релаксации;
- построение теоретической модели заселения энергетических ловушечных уровней в условиях импульсного лазерного облучения;

Объект и предмет исследования

В качестве объекта исследования рассматривались фоторефрактивные кристаллы $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ (титанат висмута), относящийся к семейству силленитов. Предметом исследования являлись энергетические, динамические и спектральные характеристики фотохромных процессов в кристаллах титаната висмута в условиях импульсного лазерного облучения.

Положения, выносимые на защиту

1. Наведенное поглощение в кристаллах титаната висмута в условиях нано- и пикосекундного лазерного возбуждения зависит от интенсивности падающего излучения при сохранении дозы облучения.

2. Для кристаллов титаната висмута существуют пороговые значения интенсивности, при превышении которых имеет место оптическое затемнение, а при меньших интенсивностях – оптическое просветление предварительно затемненных кристаллов.

3. Величина наведенного поглощения увеличивается при уменьшении длины волны возбуждающего излучения. Существует предельная длина волны, зависящая от интенсивности, выше которой фотохромный эффект не проявляется.

4. Динамика и пороговый характер наведенного поглощения в кристаллах титаната висмута в условиях импульсного возбуждения адекватно описываются теоретической моделью, учитывающей однофотонное поглощение с коротко- и долгоживущих ловушечных уровней и двухквантовое поглощение из валентной зоны.

Личный вклад соискателя

Содержание диссертации и основные положения, выносимые на защиту, отражают личный вклад соискателя в опубликованных работах. Основные работы соискателя написаны им в соавторстве с научным руководителем доктором физико-математических наук профессором А.Л. Толстиком и студентом (затем аспирантом) кафедры лазерной физики и спектроскопии А.В. Станкевичем. При этом соискатель принимал непосредственное участие в получении всех результатов, представленных в диссертации, включая разработку теоретических и компьютерных моделей, постановку и проведение экспериментов. Вклад соавторов связан с определением методов исследований, обсуждением полученных результатов, содействием при проведении экспериментов. Руководителем А.Л. Толстиком определена цель работы и осуществлена постановка теоретических и экспериментальных задач. А.В. Станкевич помогал в проведении экспериментов с использованием импульсных лазеров и участвовал в обсуждении полученных результатов. Остальные соавторы проводили исследования, которые не связаны с темой диссертации.

Апробация результатов диссертации

Результаты диссертационной работы были представлены на следующих научных конференциях: XVII, XVIII и XIX республиканских научных конференциях аспирантов, магистрантов и студентов по физике конденсированного состояния (Гродно, 2009 – 2011); 3-й Международной студенческой научно-технической конференции «Новые направления развития приборостроения» (Минск, 2010); Всероссийской конференции по фотонике и информационной оптике (Москва, 2012), IX международной научной конференции «Лазерная физика и оптические технологии» (Гродно, 2012).

Опубликованность результатов диссертации

Основные результаты диссертации опубликованы в 9 научных работах, в числе которых 3 статьи в научных журналах, соответствующих п. 18 Положения о присуждении ученых степеней и присвоении ученых званий в

Республике Беларусь, общим объемом 2 авторских листа ,1 статья в сборнике научных трудов конференции, 5 тезисов докладов.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, общей характеристики работы, четырех глав, заключения и библиографического списка. Полный объем диссертации составляет 101 страницы, в ней содержится 44 рисунка на 26 страницах. Библиографический список состоит из 105 наименований, включая собственные публикации автора.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ

В первой главе диссертации излагается краткий обзор работ по фоторефрактивным кристаллам, включая экспериментальные данные по особенностям проявления фотохромного эффекта. Приводится информация, демонстрирующая важность учета фотохромного эффекта при практическом использовании фоторефрактивных кристаллов в качестве среды для динамической голографии и оптической обработки информации.

В первом разделе дается краткая информация о фоторефрактивном эффекте и многочисленных практических приложениях, включая системы голографической записи и преобразования информации, управления световыми пучками, голографической интерферометрии и т.д.

Второй раздел посвящен зонной структуре фоторефрактивных кристаллов, относящихся к широкозонным диэлектрикам. Наличие примесей и дефектов в реальных кристаллах приводит к возникновению в запрещенной зоне локализованных энергетических состояний, обеспечивающих проводимость кристалла, при этом воздействие света позволяет создать в кристаллической решетке подвижные носители электрического тока за счет переходов электронов с примесных или дефектных уровней в зону проводимости.

В третьем разделе приводится информация о физических механизмах формирования поля пространственного заряда при световом воздействии на фоторефрактивные кристаллы. В условиях пространственно неоднородной засветки имеет место неоднородное пространственное распределения носителей зарядов, что в свою очередь, приводит к появлению поля пространственного заряда. За счет электрооптического эффекта Поккельса или Керра пространственная модуляция поля приводит к пространственной модуляции показателя преломления внутри кристалла. Этот эффект и используется при записи динамических голограмм и реализации систем управления световыми пучками.

В четвертом разделе приводится информация о наиболее популярных кристаллах семейства силленитов: силикосилленит висмута $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ (BSO) и титаносилленит висмута $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ (BTO). Эти кристаллы характеризуются хорошей светочувствительностью и высокой подвижностью носителей заряда, что позволяет достичь малых времен нелинейного отклика при низких интенсивностях лазерного излучения. Особое внимание уделяется кристаллам

титаната висмута, которые обладают высокой чувствительностью, быстродействием и позволяют работать как с непрерывным, так и с импульсным лазерным излучением.

Пятый раздел посвящен анализу работ по фотохромному эффекту в фоторефрактивных кристаллах. Фотохромный эффект наблюдается наряду с фоторефрактивным эффектом и связан с изменением оптического поглощения под действием лазерного, светодиодного или лампового освещения. Изменение оптических свойств фоторефрактивных кристаллов под действием светового облучения связывают с фотовозбуждением электронов и заселением ловушечных уровней. Динамика и эффективность заселения ловушек сильно зависят от структуры энергетических уровней и релаксационных характеристик материалов. Это фотоиндуцированное явление приводит к долговременному изменению объемных оптических свойств в области прозрачности кристаллов. При этом следует иметь в виду, что наряду с негативным влиянием фотохромного эффекта на распространение и взаимодействие световых пучков в фоторефрактивных кристаллах, открываются новые возможности использования фотохромного эффекта при работе с лазерными системами большой пиковой мощности, позволяя создавать ограничители лазерного излучения, а также управлять нелинейными свойствами фоторефрактивных материалов, в частности, расширяя область их спектральной чувствительности. Поэтому проведенные в последующих разделах диссертации исследования спектральных и динамических характеристик наведенного поглощения в кристалле титаната висмута, безусловно, имеют важное практическое значение.

Вторая глава содержит описание экспериментальных методик по исследованию фотохромного эффекта, измерению величины и динамики наведенного поглощения в фоторефрактивных кристаллах семейства силленитов.

В первом разделе приводится описание используемого оригинального лазерного оборудования: наносекундный лазер LS-2137, пикосекундный лазер LS-2151, параметрический генератор света LT-2215. Указанные лазерные системы позволяют исследовать фотоиндуцированные эффекты в широком спектральном диапазоне (от 415 нм до 2300 нм) в условиях наносекундного (длительность импульса 20 нс), а также и пикосекундного лазерного возбуждения (длина волны 532 нм, длительность импульса 70 пс).

Второй раздел посвящен описанию схемы установки и методике исследования фотохромного эффекта в кристалле титаната висмута. В процессе лазерного облучения в кристалле формировалась дефектная область, отличающаяся пропусканием в видимой и ближней ИК областях. Спектры поглощения кристалла снимались на спектрометре Solar PV 1251, позволяющем измерять оптическую плотность в спектральном диапазоне от 410 до 1000 нм.

Наряду со спектральной чувствительностью другой не менее важной характеристикой фоторефрактивных сред является время отклика. Методика исследования динамики фотоиндуцированного поглощения приведена в третьем разделе. Для анализа быстропротекающих процессов предложено использовать мощное лазерное возбуждение с длительностью импульса 70 пс

(пикосекундный лазер LS-2151) на длине волны 532 нм при частоте следования импульсов от 1 до 15 Гц. Для анализа динамики фотоиндуцированного поглощения на засвечиваемую область кристалла направлялось зондирующее излучение маломощного гелий-неонового лазера на длине волны 633 нм. Прошедшее через кристалл зондирующее излучение регистрировалось с помощью скоростного фотоприемного устройства на двухканальном осциллографе.

Исследования долгоживущих ловушечных центров с временами жизни порядка нескольких часов проводились путем стационарных измерений спектров поглощения в различные моменты времени. Преимуществом таких измерений является возможность определения кинетических зависимостей одновременно на различных длинах волн, которые могут быть связаны с заселением различных ловушечных уровней.

В третьей главе приводятся экспериментальные результаты по исследованию фотохромного эффекта в кристаллах титаната висмута при использовании лазерных источников различной интенсивности и на разных длинах волн. Проводится сравнительный анализ светоиндуцированного поглощения в кристаллах титаната висмута в условиях нано- и пикосекундного лазерного возбуждения, а также при облучении непрерывным лазерным излучением на той же длине волны (532 нм). Экспериментально исследуются спектральные особенности фотоиндуцированного поглощения при облучении излучением в диапазоне от 500 до 600 нм при различных интенсивностях лазерных импульсов.

В первом разделе исследуется фотоиндуцированное поглощение в кристаллах титаната висмута при облучении наносекундными импульсами на длине волны 532 нм. Как показали проведенные измерения, лазерное облучение формировало в фоторефрактивном кристалле дефектную область с измененным пропусканием в видимой и ближней ИК-области. Измеренные в работе при различных экспозициях спектры поглощения кристалла титаната висмута показаны на рисунке 1, а.

Как можно видеть из приведенных зависимостей, поглощение лазерного излучения титанатом висмута изменяется плавно во всем видимом диапазоне, тенденция к насыщению роста наведенного поглощения наблюдается при экспозиции порядка 500 Дж/см².

Увеличение оптической плотности кристалла титаната висмута обусловлено заселением ловушечных уровней, расположенных в запрещенной зоне. При облучении фоторефрактивного кристалла светом высокой интенсивности электроны переходят в зону проводимости. В процессе релаксации из зоны проводимости часть носителей заряда возвращается обратно в валентную зону, а часть переходит на долгоживущие уровни – «ловушечные» уровни, расположенные в запрещенной зоне. Это приводит к возникновению дополнительных центров поглощения длинноволнового излучения. Так как релаксация ловушек титаната висмута медленный процесс, то поглощение, инициированное в кристалле лазерным излучением, сохраняется на протяжении длительного периода времени (несколько суток).

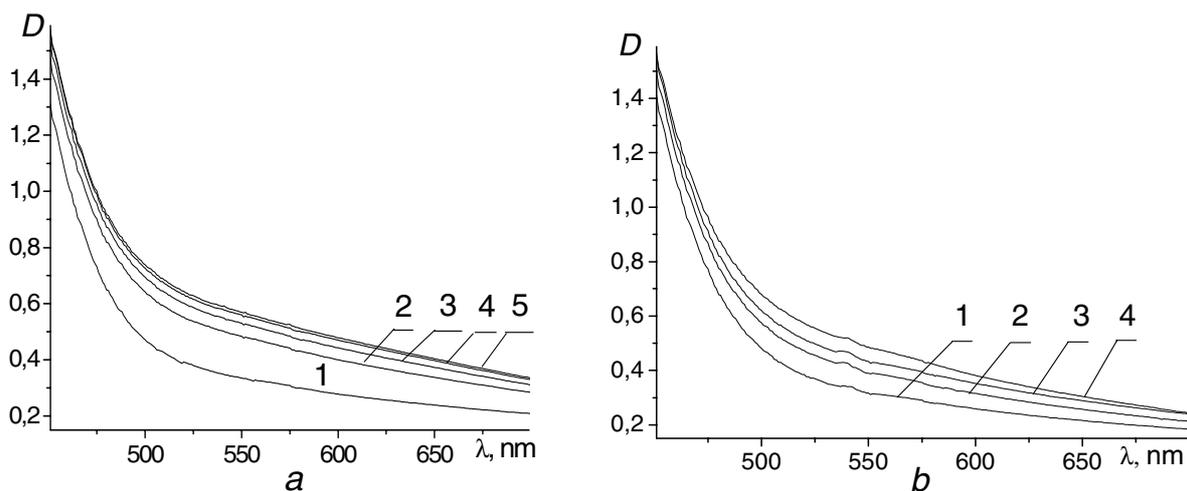


Рисунок 1– Спектры оптической плотности кристалла титаната висмута в условиях нано- (а) и пикосекундного (б) облучения при экспозиции 0 (1), 250 (2), 500 (3), 750 (4), 1000 (5) Дж/см² (а) и 0 (1), 15 (2), 30 (3), 50 (4) Дж/см² (б) и пиковой интенсивности лазерных импульсов 1 МВт/см² (а) и 50 МВт/см² (б)

Во втором разделе третьей главы анализируются эффекты фотоиндуцированного поглощения в титанате висмута при облучении пикосекундными лазерными импульсами. Длина волны облучения составляла 532 нм, длительность импульса 70 пс и частота следования импульсов 15 Гц. При этом средняя мощность лазерного излучения изменялась от 0,5 до 7,5 мВт, что соответствовало изменению пиковой интенсивности в импульсе – от 10 до 140 МВт/см² (засвечиваемая площадь 5 мм²). Результаты измерения оптической плотности представлены на рисунке 1, б. Видно, что существенное изменение коэффициента наведенного поглощения имеет место при дозе облучения порядка 10 Дж/см², при этом тенденция к насыщению роста наступает при экспозиции менее 50 Дж/см².

Результаты исследований фотоиндуцированных эффектов в кристалле титаната висмута при непрерывном лазерном облучении представлены в третьем разделе. В качестве источника излучения использовался твердотельный лазер с диодной накачкой и внутрирезонаторной генерацией второй гармоники (длина волны 532 нм). Мощность на входе в кристалл составила 12 мВт, интенсивность излучения на входной грани кристалла 240 мВт/см². Предварительные эксперименты показали, что засветка в течение нескольких часов не приводит к заметному затемнению кристалла. При этом была достигнута доза облучения 1700 Дж/см², которая существенно превысила экспозицию в экспериментах с нано- и пикосекундным излучением.

В то же время было замечено, что непрерывная засветка лазерным излучением приводит к просветлению предварительно затемненного кристалла. Доза облучения, достаточная для просветления кристалла, (десятки Дж/см²) существенно меньше дозы, необходимой для затемнения кристалла

наносекундными лазерными импульсами (сотни Дж/см²). Эффект оптического просветления можно объяснить переходами электронов с долгоживущих ловушечных уровней в зону проводимости и последующим переходом их на короткоживущие ловушечные уровни с малым сечением поглощения или напрямую в валентную зону. Проведенный сравнительный анализ оптического просветления с использованием излучения на длинах волн 532 нм и 633 нм показал, что эффект оптического просветления при переходе в «красную» область спектра требует на порядок большей дозы облучения по сравнению с использованием «зеленого» лазерного излучения.

Обнаруженный эффект оптического просветления на длине волны 532 нм открывает возможность осуществления эффективной модуляции оптических свойств кристаллов титаната висмута. Облучение нано- и пикосекундными импульсами приводит к затемнению кристалла и увеличению коэффициента поглощения, а облучение низко интенсивным излучением на той же длине волны позволяет реализовать обратный процесс оптического просветления.

С учетом полученных результатов в четвертом разделе проводится сравнительный анализ проявления фотохромного эффекта в различных условиях лазерного возбуждения. Было проведено исследование зависимости коэффициента наведенного поглощения от интенсивности падающего излучения при сохранении дозы облучения. Показано, что уменьшение пиковой интенсивности приводит к весьма заметному уменьшению наведенного поглощения, при этом диапазон используемых интенсивностей, для которых проявляется фотохромный эффект, существенно зависит от длительности лазерного импульса. Так для наносекундных импульсов это сотни кВт/см², а для пикосекундных импульсов требуются интенсивности порядка десятков МВт/см².

Особенностью измеренных зависимостей является их пороговый характер. Так при интенсивностях меньших 0,05 МВт/см² для наносекундных импульсов и меньших 10 МВт/см² для пикосекундных импульсов фотохромный эффект не наблюдается даже при больших дозах облучения (свыше 1000 Дж/см²). Тенденция к выходу на насыщение имеет место при интенсивностях свыше 1 МВт/см² и 100 МВт/см² для нано- и пикосекундных импульсов, соответственно. Пересчет приведенных выше значений интенсивности на энергию падающих импульсов показал, что одинаковое изменение оптической плотности $\Delta D = 0,25$ достигается для пикосекундных импульсов при существенно меньшей энергии импульсов (в 5 раз) и дозе облучения, меньшей в 30 раз.

В пятом разделе анализируются спектральные особенности фотохромного эффекта в кристаллах титаната висмута при использовании в качестве источника излучения параметрического генератора света. Показано, что с увеличением интенсивности расширяется спектральный диапазон длин волн, приводящих к оптическому затемнению. Величина наведенного поглощения увеличивается при уменьшении длины волны возбуждающего излучения и приближении к краю фундаментального поглощения. С другой стороны, имеет место длинноволновая граница, за пределами которой лазерное

облучение не приводит к оптическому затемнению. Из сравнения зависимостей, полученных при различных интенсивностях возбуждающего излучения, следует, что граничная длина волны зависит от интенсивности. Так, например, при интенсивности $0,1 \text{ МВт/см}^2$ фотохромный эффект практически не наблюдается при облучении кристалла излучением с длиной волны свыше 530 нм. При интенсивности $0,4 \text{ МВт/см}^2$ граничная длина волны составила 550 нм, а при $0,8 \text{ МВт/см}^2$ граница сместилась к 570 нм.

С другой стороны, при фиксированной длине волны возбуждающего излучения величина наведенного поглощения существенно зависит от интенсивности. Увеличение интенсивности в диапазоне от $0,1$ до $0,8 \text{ МВт/см}^2$ приводит вначале к заметному росту наведенного поглощения, а затем к его насыщению. Причем, максимально достижимая величина наведенного поглощения зависит не только от длины волны наблюдения, но и от длины волны возбуждающего излучения. Если сравнить зависимости, полученные при лазерном возбуждении на разных длинах волн и интенсивности порядка 1 МВт/см^2 , то имеем для длины волны возбуждения 500 нм предельное изменение оптической плотности $\Delta D \sim 0,55$, для 520 нм – $\Delta D \sim 0,35$ и для 532 нм – $\Delta D \sim 0,25$ (все значения наведенной оптической плотности взяты на длине волны наблюдения $\lambda = 500 \text{ нм}$).

Заключительная **четвертая глава** посвящена анализу динамических характеристик фотохромного эффекта и построению теоретической модели, учитывающей светоиндуцированные переходы электронов из валентной зоны и ловушечных уровней в зону проводимости, а также обратный процесс электронно-дырочной рекомбинации. На основе исследований динамики наведенного поглощения определяются характерные времена релаксационных переходов с коротко- и долгоживущих ловушечных уровней.

В первом разделе предлагается теоретическая модель фотохромного эффекта в кристаллах титаната висмута при импульсном облучении, использующая сложную схему энергетических уровней в запрещенной зоне кристаллов семейства силленитов. Как известно, положение и время жизни электронов на ловушечных уровнях существенно зависят от структуры дефектных центров, типа и концентрации примесей. Мы ограничимся рассмотрением только той части процессов фотовозбуждения, рекомбинации и захвата электронов на ловушечные состояния, которые позволяют адекватно объяснить наблюдаемую динамику фотоиндуцированного поглощения в условиях наших экспериментов.

Предложенная модель включает конкурирующие процессы однофотонного поглощения с промежуточных коротко- и долгоживущих ловушечных уровней и двухквантового ступенчатого поглощения из валентной зоны. Двухквантовые процессы позволяют осуществить прямой переход электронов из валентной зоны в зону проводимости, из которой электроны с некоторой вероятностью оседают на долгоживущие ловушечные уровни запрещенной зоны либо возвращаются в валентную зону. Заселение ловушечных уровней приводит к эффекту оптического затемнения. Вследствие того, что энергетический зазор между долгоживущими ловушечными уровнями

и зоной проводимости меньше энергии кванта излучения, становится возможным светоиндуцированный одноквантовый переход электронов с ловушечных уровней в зону проводимости, откуда они могут либо перейти обратно на ловушечные уровни либо вернуться в валентную зону. Заметим, что рассматриваемые одноквантовые переходы эффективно работают как в случае коротких (нано- и пикосекундных) импульсов, так и при использовании непрерывной засветки. В последнем случае мы будем наблюдать эффект оптического просветления.

Конкуренция описанных выше одно- и двухквантовых процессов объясняет пороговый характер зависимости фотохромного эффекта от интенсивности излучения. Суммарный коэффициент поглощения Δk в этом случае можно представить в виде:

$$\Delta k = \sigma_2 \cdot I^2 - \sigma_1 \cdot I \quad (1)$$

где I – интенсивность падающего излучения, σ_1 – коэффициент пропорциональный вероятности ухода электрона с ловушечного уровня через зону проводимости в валентную зону, σ_2 – коэффициент пропорциональный вероятности двухквантового перехода электрона из валентной зоны через зону проводимости на ловушечный уровень.

При малых интенсивностях падающего на кристалл лазерного излучения значение первого члена в правой части намного ниже, нежели значения второго члена, который и определяет величину изменения коэффициента поглощения Δk . Следствием этого является экспериментально наблюдаемое уменьшение наведенного поглощения предварительно затемненного кристалла ($\Delta k < 0$). Если же кристалл предварительно не был затемнен, то коэффициент поглощения не изменяется, так как процесс просветления в полной мере компенсирует процесс затемнения. При больших интенсивностях падающего излучения значение первого члена в выражении (1) преобладает, что и приводит к затемнению кристалла под действием мощных нано- и пикосекундных импульсов. Очевидно, что существует интенсивность, при которой процессы заселения ловушечных уровней компенсируются процессами их опустошения. Эту интенсивность можно считать пороговой:

$$I_{nop} = \sigma_1 / \sigma_2. \quad (2)$$

Для количественного описания указанных процессов рассмотрим модель, включающую заселение короткоживущих и долгоживущих энергетических уровней (ловушек), расположенных в запрещенной зоне кристалла (рисунок 2).

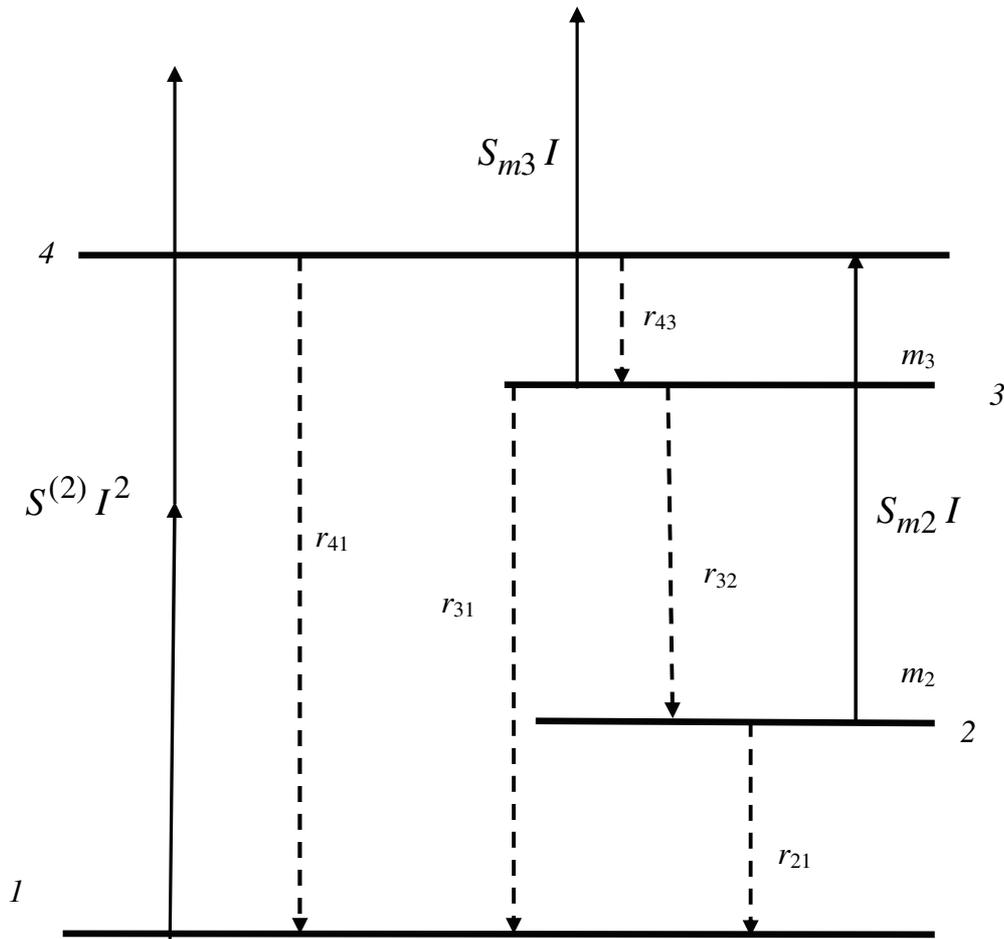
В приближении однофотонного поглощения, обусловленного фотовозбуждением электронов с промежуточных долгоживущих 2 и короткоживущих 3 ловушечных уровней, и двухквантового перевода электронов из валентной зоны 1 в зону проводимости 4 систему кинетических уравнений для описания фотоиндуцированного поглощения в кристаллах титаната висмута можно представить в виде:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\gamma}{2\hbar} I^2 + m_3 S_{m3} I + m_2 S_{m2} I - r_{41} np - r_{43} n(M_3 - m_3), \quad (3)$$

$$\frac{\partial m_3}{\partial t} = -m_3 S_{m3} I + r_{43} n (M_3 - m_3) - r_{32} m_3 (M_2 - m_2) - r_{31} m_3 p, \quad (4)$$

$$\frac{\partial m_2}{\partial t} = -m_2 S_{m2} I + r_{32} m_3 (M_2 - m_2) - r_{21} m_2 p, \quad (5)$$

где n – концентрация электронов в зоне проводимости; m_2 и m_3 – концентрации электронов на долгоживущем 2 и короткоживущем 3 уровнях, соответственно; M_2 и M_3 – полные концентрации долгоживущих и короткоживущих ловушек; p – концентрация дырок в валентной зоне; γ – коэффициент двухфотонного поглощения; S_{m2} , S_{m3} – сечения фотоионизации с ловушечных уровней; r_{43} , r_{41} , r_{32} , r_{31} , r_{21} – коэффициенты рекомбинации электронов и дырок при переходах между соответствующими уровнями и зонами.



1 – валентная зона, 2 – долгоживущие, 3 – короткоживущие ловушечные уровни,
 4 – зона проводимости

Рисунок 2 – Схема энергетических состояний и характерные процессы фотовозбуждения, рекомбинации и захвата подвижных носителей в кристалле титаната висмута

Исходя из условия сохранения зарядов, количество дырок в валентной зоне равно суммарному количеству электронов в зоне проводимости и на ловушечных уровнях:

$$p = n + m_2 + m_3. \quad (6)$$

Коэффициент наведенного поглощения рассчитывается как произведение соответствующих сечений фотоионизации и концентраций электронов на долгоживущих и короткоживущих ловушечных уровнях:

$$k = h\nu(S_{m2}m_2 + S_{m3}m_3). \quad (7)$$

Используя систему кинетических уравнений (3) – (5) и уравнения (6), (7), можно рассчитать как величину наведенного поглощения, так и динамику заселения и релаксации ловушечных уровней.

Динамика фотоиндуцированного поглощения света в кристаллах титаната висмута при импульсном возбуждении анализируется во втором разделе. Типичная осциллограмма зондирующего излучения гелий-неонового лазера, прошедшее через затемненную область кристалла, представлена на рисунке 3. Видно, что при пикосекундном возбуждении происходило заметное уменьшение пропускания кристалла, которое возвращалось к своему исходному уровню к моменту прихода следующего импульса. Увеличение числа поглощенных импульсов приводило к снижению остаточного уровня пропускания. Для заметного уменьшения пропускания необходима засветка большим количеством импульсов ($\sim 10^3 - 10^4$).

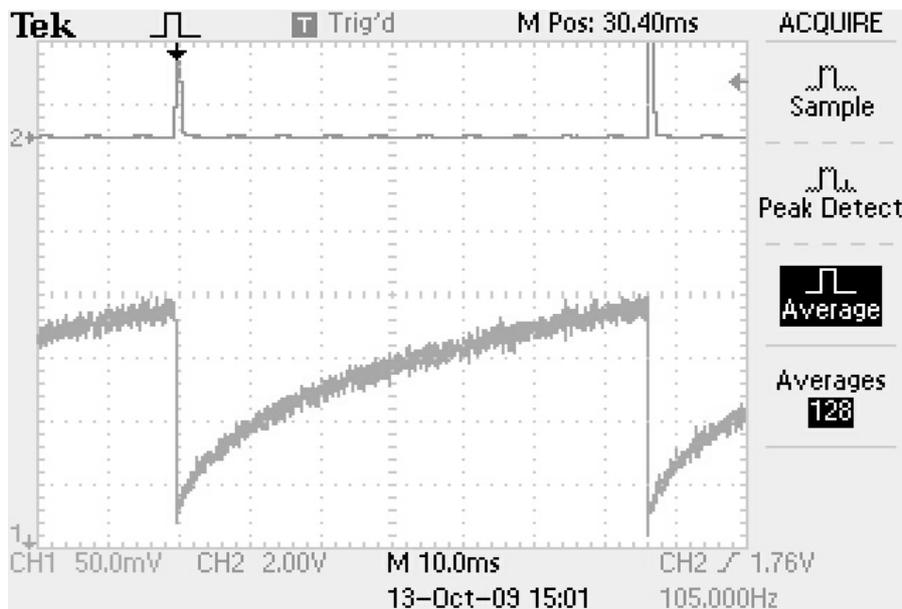


Рисунок 3 – Осциллограммы зондирующего излучения (1-й канал) и пикосекундных импульсов (2-й канал) при частоте следования импульсов 15 Гц

Для объяснения полученных экспериментальных результатов воспользуемся приведенной в предыдущем разделе теоретической моделью, включающей коротко- и долгоживущие ловушечные уровни (рисунок 2). Удовлетворительное совпадение теоретических и экспериментальных результатов получено при введении двух подуровней с различными временами жизни для короткоживущего ловушечного уровня. Показано, что в этом случае коэффициент поглощения можно представить в виде:

$$k = k_{3a0} \exp(-t/\tau_{3a}) + \frac{k_{3b0}}{1 + t/\tau_{3b}}, \quad (8)$$

где k_{3a0} , k_{3b0} – начальные коэффициенты поглощения, связанные с соответствующими подуровнями, τ_{3a} и τ_{3b} – их времена жизни. Количественное соответствие теоретических и экспериментальных результатов получено при следующих параметрах: $k_{3a0} = 0,52 \text{ см}^{-1}$, $k_{3b0} = 0,83 \text{ см}^{-1}$, $\tau_{3a} = 1 \text{ мс}$, $\tau_{3b} = 35 \text{ мс}$.

Аналогичным образом проанализированы процессы релаксации долгоживущих ловушек, для которых коэффициент поглощения можно представить в виде:

$$k = k_{2a0} \exp(-t/\tau_{2a}) + \frac{k_{2b0}}{1 + t/\tau_{2b}}. \quad (9)$$

Количественное соответствие теоретических и экспериментальных данных получено при начальных коэффициентах поглощения $k_{2a0} = k_{2b0} = 2 \text{ см}^{-1}$ и временах жизни $\tau_{2a} = 10^4 \text{ с}$ и $\tau_{2b} = 1,7 \cdot 10^5 \text{ с}$.

Заключительный третий раздел посвящен численному моделированию процесса фотоиндуцированного поглощения в кристаллах титаната висмута при импульсном возбуждении на основе системы уравнений (3) – (5). Представленные на рисунке 4 расчеты проведены в приближении прямоугольной формы лазерных импульсов и равенства полных концентраций долгоживущих и короткоживущих ловушек ($M_2 = M_3 = M$). При выборе коэффициентов рекомбинации электронов и дырок использованы данные по динамике фотоиндуцированного поглощения: $Mr_{21} = 10^{-4} \text{ с}^{-1}$, $Mr_{31} = 10^3 \text{ с}^{-1}$, $Mr_{32} = 1 \text{ с}^{-1}$, $Mr_{41} = Mr_{43} = 10^7 \text{ с}^{-1}$.

Как видно из рисунка 4, при лазерном возбуждении имеет место импульсное увеличение коэффициента поглощения, обусловленное заселением короткоживущих ловушечных уровней, и последующая релаксация, связанная с переходами электронов в валентную зону и на долгоживущие ловушечные уровни. Монотонное увеличение остаточного уровня поглощения, связанного с заселением долгоживущих ловушек, наблюдается при использовании большого числа импульсов.

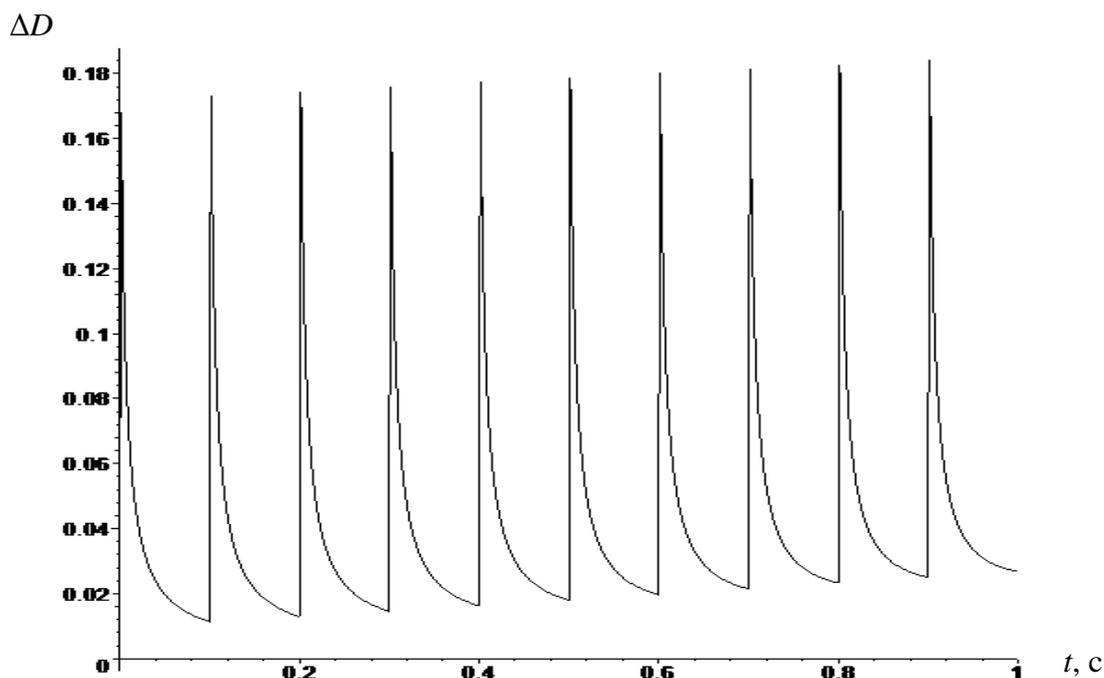


Рисунок 4 – Динамика оптической плотности при импульсной засветке кристаллов титаната висмута

В заключительной части работы проведено сопоставление экспериментальных и теоретических данных. Представленные на рисунке 5 зависимости показывают удовлетворительное соответствие теоретических и экспериментальных результатов, которое было получено при использовании соответствующих нормировочных коэффициентов пересчета для интенсивности и оптической плотности.

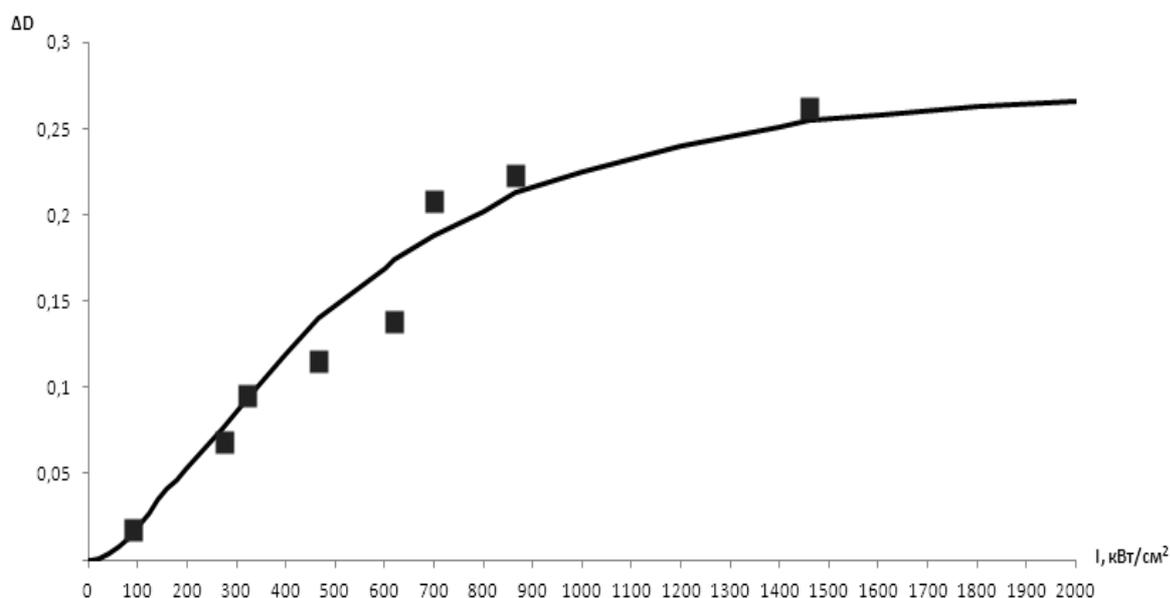


Рисунок 5 – Зависимость оптической плотности от интенсивности для длины волны 532 нм и фиксированной дозе облучения 500 Дж/см² (сплошная линия – теоретическая зависимость, точки – экспериментальные данные)

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные научные результаты диссертации

1. Сравнительное экспериментальное исследование эффекта оптического затемнения фоторефрактивных кристаллов титаната висмута при их облучении импульсным излучением позволили выявить зависимость фотохромного эффекта от длины волны и длительности лазерных импульсов. В условиях нано- и пикосекундного возбуждения установлена зависимость коэффициента наведенного поглощения от интенсивности падающего излучения при сохранении дозы облучения. [1, 3, 5, 6].

2. Впервые обнаружены пороговые значения интенсивности и плотности энергии лазерных импульсов, при превышении которых имеет место эффект оптического затемнения. Предложена феноменологическая модель, позволяющая качественно объяснить обнаруженную пороговую зависимость фотохромного эффекта конкуренцией двух механизмов заселения и опустошения ловушечных уровней. При небольших интенсивностях лазерного излучения доминируют процессы поглощения с промежуточного ловушечного уровня, приводящие к просветлению предварительно затемненного фоторефрактивного кристалла. С увеличением интенсивности включается двухквантовое поглощение из валентной зоны, эффективно заселяющее ловушечные уровни. [1, 4, 8].

3. Проанализированы спектральные зависимости наведенного поглощения в кристаллах титаната висмута в условиях возбуждения наносекундными импульсами в диапазоне 500 – 600 нм. Показано, что величина наведенного поглощения увеличивается при уменьшении длины волны возбуждающего излучения. Существует предельная длина волны, выше которой фотохромный эффект не проявляется, причем предельное значение длины волны увеличивается при увеличении интенсивности возбуждающего излучения в условиях сохранения дозы облучения. [3, 9].

4. Исследована динамика наведенного поглощения в кристаллах титаната висмута и определены характерные времена жизни коротко- и долгоживущих ловушечных центров. Рекомбинация электронов с короткоживущих ловушечных уровней происходит с характерными временами, лежащими в миллисекундном диапазоне. В условиях одноимпульсного возбуждения опустошение короткоживущих ловушек практически возвращает коэффициент поглощения к исходному значению. Воздействие большого (несколько тысяч) числа импульсов позволяет заселить долгоживущие ловушки, время жизни которых составляет десятки часов. [2, 8].

5. Предложена теоретическая модель, включающая однофотонное поглощение с промежуточных коротко- и долгоживущих ловушечных уровней и двухквантовое поглощение из валентной зоны, позволяющая объяснить экспериментальные результаты по динамике наведенного поглощения в кристаллах титаната висмута в условиях импульсного возбуждения. [2, 7, 8].

Рекомендации по практическому использованию результатов

Диссертационная работа относится к области фундаментальных исследований взаимодействия лазерного излучения с фоторефрактивными средами. Практическая значимость обусловлена использованием динамических голограмм и нелинейных интерферометров на основе фоторефрактивных кристаллов в системах оптической обработки информации. Полученные в работе результаты исследований наведенного поглощения в кристаллах титаната висмута использовались в Томском государственном университете систем управления и радиоэлектроники, институте прикладной оптики университета им. Ф.Шиллера (Йена, Германия) и представляют практический интерес в связи с применением фоторефрактивных кристаллов в разнообразных лазерно-оптических системах. Обнаруженные закономерности проявления фотохромного эффекта при импульсном возбуждении включены в лекционный курс «Нелинейная оптика» для студентов четвертого курса кафедры лазерной физики и спектроскопии БГУ.

СПИСОК ОПУБЛИКОВАННЫХ РАБОТ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи в рецензируемых научных журналах

1. Станкевич, А.В. Фотоиндуцированное поглощение в кристаллах титаната висмута при нано- и пикосекундном возбуждении / А.В. Станкевич, А.Л. Толстик, Х.К. Ханун // Письма в Журн. техн. физики. – 2011. – Т. 37, № 16. – С. 7–14.

2. Толстик, А.Л. Динамика фотоиндуцированного поглощения в кристаллах титаната висмута / А.Л. Толстик, Х.К. Ханун // Вестн. БГУ. Сер. 1, Физика. Математика. Информатика. – 2012. – № 2. – С. 3–7.

3. Ханун, Х.К. Спектральные особенности фотохромного эффекта в кристаллах титаната висмута при импульсном возбуждении / Х.К. Ханун, А.В. Станкевич, А.Л. Толстик // Вестн. БГУ. Сер. 1, Физика. Математика. Информатика. – 2012. – № 3. – С. 3–6.

Статьи в сборниках научных трудов конференций

4. Фотоиндуцированные изменения оптического поглощения в кристалле $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}:\text{Ca}$, наведенные импульсным и непрерывным лазерным излучением / Е.А. Пекарских, М.Г. Кистенева, С.М. Шандаров, А.Л. Толстик, Х.К. Ханун, Ю.Ф. Каргин // Всероссийская конференция по фотонике и информационной оптике, Москва, 25–27 янв. 2012 г. : сб. науч. тр. / Нац. исслед. ядер. ун-т «Моск. инженер.-физ. ин-т». – М., 2012. – С. 82–83.

Тезисы докладов конференций

5. Станкевич, А.В. Фотохромные эффекты в кристаллах силиката и титаната висмута / А.В. Станкевич, Х.К. Ханун // Физика конденсированного состояния : ФКС : тез. докл. XVII респ. науч. конф. аспирантов, магистрантов и студентов, Гродно, 16–17 апр. 2009 г. / Гродн. гос. ун-т ; редкол.: Е.А. Ровба (отв. ред.) [и др.]. – Гродно, 2009. – С. 150–151.

6. Станкевич, А.В. Фотоиндуцированное поглощение в кристаллах титаната висмута при нано- и пикосекундном возбуждении / А.В. Станкевич, Х.К. Ханун // Физика конденсированного состояния : ФКС : тез. докл. XVIII респ. науч. конф. аспирантов, магистрантов и студентов, Гродно, 21–23 апр. 2010 г. / Гродн. гос. ун-т ; редкол.: Е.А. Ровба (отв. ред.) [и др.]. – Гродно, 2010. – С. 201–203.

7. Станкевич, А.В. Фотохромные эффекты в кристаллах титаната висмута при импульсном возбуждении / А.В. Станкевич, Х.К. Ханун // Новые направления развития приборостроения : материалы III Междунар. студенч. науч.-техн. конф., Минск, 21–23 апр. 2010 г. / Белорус. нац. техн. ун-т ; редкол.: О.К. Гусев (пред.) [и др.]. – Минск, 2010. – С. 209.

8. Станкевич, А.В. Фотопроводимость кристаллов титаната висмута при непрерывном лазерном облучении / А.В. Станкевич, Х.К. Ханун, В.А. Галамка // Физика конденсированного состояния : ФКС : тез. докл. XIX респ. науч. конф. аспирантов, магистрантов и студентов, Гродно, 19–20 апр. 2011 г. / Гродн. гос. ун-т ; редкол.: Е.А. Ровба (отв. ред.) [и др.]. – Гродно, 2011. – С. 207–209.

9. Ханун, Х.К. Спектральные особенности фотохромного эффекта в кристаллах титаната висмута при импульсном возбуждении / Х.К. Ханун, А.В. Станкевич, А.Л. Толстик // Лазерная физика и оптические технологии : сб. тез. IX междунар. науч. конф., Гродно, 30 мая–2 июня 2012 г. / Гродн. гос. ун-т. – Гродно, 2012. – С. 154.

РЭЗЮМЭ

Ханун Хайдэр Камел

Фотахромныя эфекты ў фотарэфрактыўных крышталях тытанату вiсмуту

Ключавыя словы: фотарэфрактыўныя крышталі, фотаіндуцыраванае паглыннанне, фотахромны эфект, крышталі сілянітаў, тытанат вiсмуту.

У рабоце прадстаўлены вынікі тэарэтычных і эксперыментальных даследаванняў фотахромнага эфекту ў крышталях тытанату вiсмуту ва ўмовах імпульснага нана- і пікасекунднага ўзбуджэння. Мэта работы заключалася ў распрацоўцы метаду абарачальнай мадыфікацыі фотарэфрактыўных крышталяў тытанату вiсмуту з выкарыстаннем дадатковага аптычнага выпраменьвання ў бачнай вобласці спектра і ўстанаўленні спектральных, энергетычных і дынамічных заканамернасцей фотаіндуцыраванага паглынання ва ўмовах імпульснага лазернага ўздзеяння.

Праведзены параўнальны аналіз фотаіндуцыраванага паглынання крышталяў тытанату вiсмуту пры іх апрамяненні высокаінтэнсіўным нана- і пікасекундным выпраменьваннем з даўжынёй хвалі 532 нм. Упершыню выяўлена залежнасць фотахромнага эфекту ад інтэнсіўнасці пры захаванні дозы апрамянення і прапанавана феноменалагічная мадэль, якая ўключае аднафатоннае паглыннанне з прамежкавых каротка- і доўгаіснуючых пасткавых узроўняў і двухквантавае паглыннанне з валентнай зоны. Пры невялікіх інтэнсіўнасцях лазернага выпраменьвання дамінуюць працэсы паглынання з прамежкавага пасткавага ўзроўню, што прыводзяць да прасвятлення папярэдне зацемненага фотарэфрактыўнага крышталю. З павелічэннем інтэнсіўнасці ўключаецца двухквантавае паглыннанне з валентнай зоны, якое эфектыўна засяляе пасткавыя ўзроўні і прыводзіць да павелічэння аптычнага паглынання.

Выяўлены спектральныя залежнасці наведзенага паглынання ў крышталях тытанату вiсмуту ва ўмовах узбуджэння наносекунднымі імпульсамі ў дыяпазоне 500 – 600 нм. Паказана існаванне гранічнай даўжыні хвалі, вышэй за якую фотахромны эфект не выяўляецца. Вызначаны характэрны час жыцця электронаў на пасткавых узроўнях у крышталях тытанату вiсмуту і прапанавана тэарэтычная мадэль, якая тлумачыць дынаміку засялення пасткавых узроўняў.

Работа адносіцца да галіны фундаментальных даследаванняў узаемадзеяння лазернага выпраменьвання з фотарэфрактыўнымі крышталямі. Атрыманыя вынікі тлумачаць заканамернасці праяўлення фотахромнага эфекту ў крышталях сямейства сілянітаў, дазваляюць пашырыць сферу іх спектральнай адчувальнасці і могуць быць выкарыстаны пры вырашэнні разнастайных задач дынамічнай галаграфіі, галаграфічнай інтэрфераметрыі і аптычнай апрацоўкі інфармацыі.

РЕЗЮМЕ

Ханун Хайдер Камел

Фотохромные эффекты в фоторефрактивных кристаллах титаната висмута

Ключевые слова: фоторефрактивные кристаллы, фотоиндуцированное поглощение, фотохромный эффект, кристаллы силленитов, титанат висмута.

В работе представлены результаты теоретических и экспериментальных исследований фотохромного эффекта в кристаллах титаната висмута в условиях импульсного нано- и пикосекундного возбуждения. Цель работы состояла в разработке метода обратимой модификации фоторефрактивных кристаллов титаната висмута с использованием дополнительного оптического излучения в видимой области спектра и установлении спектральных, энергетических и динамических закономерностей фотоиндуцированного поглощения в условиях импульсного лазерного воздействия.

Проведен сравнительный анализ фотоиндуцированного поглощения кристаллов титаната висмута при их облучении высокоинтенсивным нано- и пикосекундным излучением с длиной волны 532 нм. Впервые обнаружена зависимость фотохромного эффекта от интенсивности при сохранении дозы облучения и предложена феноменологическая модель, включающая однофотонное поглощение с промежуточных коротко- и долгоживущих ловушечных уровней и двухквантовое поглощение из валентной зоны. При небольших интенсивностях лазерного излучения доминируют процессы поглощения с промежуточного ловушечного уровня, приводящие к просветлению предварительно затемненного фоторефрактивного кристалла. С увеличением интенсивности включается двухквантовое поглощение из валентной зоны, эффективно заселяющее ловушечные уровни и приводящее к увеличению оптического поглощения.

Установлены спектральные зависимости наведенного поглощения в кристаллах титаната висмута в условиях возбуждения наносекундными импульсами в диапазоне 500 – 600 нм. Показано существование предельной длины волны, выше которой фотохромный эффект не проявляется. Определены характерные времена жизни электронов на ловушечных уровнях в кристаллах титаната висмута и предложена теоретическая модель, объясняющая динамику заселения ловушечных уровней.

Работа относится к области фундаментальных исследований взаимодействия лазерного излучения с фоторефрактивными кристаллами. Полученные результаты проясняют закономерности проявления фотохромного эффекта в кристаллах семейства силленитов, позволяют расширить область их спектральной чувствительности и применимы при решении разнообразных задач динамической голографии, голографической интерферометрии и оптической обработки информации.

SUMMARY
HANOON HAIDER KAMIL

The Photochromic Effects in Photorefractive Crystals of Bismuth Titanate

Key words: photorefractive crystals, photoinduced absorption, photochromic effect, sillenite crystals, bismuth titanate.

This work presents the results of theoretical and experimental studies of the photochromic effect in bismuth titanate crystals under conditions of pulsed nano- and picosecond excitation. The principal objective of the work is to develop a method for reversible modification of photorefractive bismuth titanate crystals with the use of an additional optical radiation in the visible spectral range and to establish the spectral, energy, and dynamic patterns of the photoinduced absorption under conditions of pulsed laser irradiation.

A comparative analysis of the photoinduced absorption of the bismuth titanate crystals subjected to the effect of high-intensity nano- and picosecond radiation with the wavelength 532 nm has been conducted. The relationship between the photochromic effect and the intensity with a fixed radiation dose has been found for the first time; a phenomenological model including a single-photon absorption from the intermediate short- and long-lived trapping levels and also two-photon absorption from the valence band has been proposed. At low intensities of laser radiation the absorption processes from the intermediate trapping level are dominant leading to bleaching of the preliminary antibleached photorefractive crystal. With an increase in the intensity, the two-photon absorption from the valence band is switched on to populate the trapping levels and to result in the increased optical absorption.

The spectral dependences of the induced absorption in bismuth titanate crystals have been determined in conditions of nanosecond pulsed excitation over the range from 500 to 600 nm. The limiting wavelength has been demonstrated above which no photochromic effect is exhibited. The characteristic lifetimes of the electrons at trapping levels in bismuth titanate crystals have been found; a theoretical model has been proposed to explain the dynamics of the trapping level population.

The work has been realized in the field of fundamental studies of the interactions between laser radiation and photorefractive crystals. The results obtained are useful for better insight into manifestations of the photochromic effect in the sillenite family crystals; they enable one to widen the region of spectral sensitivity for these crystals and may be used when solving various problems of dynamic holography, holographic interferometry, and optical data processing.

Подписано в печать 19.12.2012. Формат 60×84 ¹/₁₆. Бумага офсетная.
Ризография. Усл. печ. л. 1,16. Уч.-изд. л. 1,25.
Тираж 80 экз. Заказ 911.

Отпечатано с оригинала-макета заказчика
в республиканском унитарном предприятии
«Издательский центр Белорусского государственного университета».
ЛП № 02330/0494178 от 03.04.2009.
Ул. Красноармейская, 6, 220030, Минск.