

Фотоиндуцированное поглощение и импульсная запись динамических голограмм в кристаллах силиката висмута

© И.Г. Даденков¹, А.Л. Толстик^{1,¶}, Ю.И. Миксюк³, К.А. Саечников²

¹Белорусский государственный университет,
220030 Минск, Беларусь

²Белорусский государственный педагогический университет,
220030 Минск, Беларусь

[¶]e-mail: Tolstik@bsu.by

Поступила в редакцию 15.03.2020 г.

В окончательной редакции 15.03.2020 г.

Принята к публикации 20.05.2020 г.

Исследована динамика фотоиндуцированного поглощения и записи голографических решеток в фоторефрактивных кристаллах силиката висмута. Показано, что при использовании наносекундных лазерных импульсов и интенсивности порядка 1 MW/cm^2 и более имеет место наведенное поглощение, обусловленное заселением короткоживущих ловушечных уровней с характерными временами релаксации на уровне единиц и десятков миллисекунд. В этих условиях реализована запись динамических голограмм в кристаллах силиката висмута. Установлены два механизма записи голографических решеток с временами жизни, отличающимися на три порядка. При сравнительно небольших интенсивностях, меньших либо порядка 1 MW/cm^2 , отклик среды определяется фоторефрактивным механизмом нелинейности с временем релаксации на уровне нескольких секунд. При интенсивностях, превышающих 5 MW/cm^2 , появляется быстрая компонента (время релаксации миллисекунды), которую можно связать с заселением короткоживущих ловушек. Показано, что вклад каждого механизма существенно зависит от интенсивности лазерного излучения и при интенсивностях, превышающих $10\text{--}15 \text{ MW/cm}^2$, определяющую роль играют короткоживущие ловушки с временем жизни порядка миллисекунд.

Ключевые слова: голография, динамические голограммы, фотоиндуцированное поглощение, силлениты, силикат висмута.

DOI: 10.21883/0000000000

Введение

Одним из существенных преимуществ кубических фоторефрактивных кристаллов семейства силленитов ($\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$, $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$, $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$) является формирование в них динамических голограмм в реальном времени. Это определяет их использование в адаптивных интерферометрах, системах ассоциативной памяти и усиления оптических изображений, голографических системах записи, хранения и обработки информации и др. [1–6]. Физические процессы записи голограмм в фоторефрактивных кристаллах основаны на пространственном перераспределении зарядов в поле интерферирующих световых пучков по многочисленным центрам, имеющим разнообразную природу возникновения и характеристики.

По своей энергетической структуре фоторефрактивные кристаллы относятся к широкозонным диэлектрикам, при этом существенное влияние оказывают примеси и структурные дефекты кристаллической решетки, приводящие к возникновению в запрещенной зоне донорных и акцепторных энергетических уровней [5,7]. Особенностью является одновременное существование как долгоживущих (секунды, часы), так и короткоживущих ловушек (микро- и миллисекунды) [8–13]. Пе-

реходы с уровня, лежащего в запрещенной зоне, в зону проводимости приводят к образованию подвижных носителей заряда, причем такие переходы возможны при использовании излучения с заметно большей длиной волны, чем для прямых межзонных переходов, позволяя работать с излучением в видимой и ближней ИК областях спектра [5,14]. Последующая диффузия или дрейф электронов во внешнем электрическом поле обуславливают заселение ловушечных уровней, формирование поля пространственного заряда и модуляцию показателя преломления вследствие эффекта Поккельса. Таким образом формируется голографическая решетка, динамика которой определяется динамикой поля пространственного заряда. Как правило, для формирования динамических голограмм в фоторефрактивных кристаллах используют непрерывное лазерное излучение [1–4,6,7]. Новые возможности открываются при использовании лазерных импульсов нано- и пикосекундной длительности [15–18].

В настоящей работе приведены результаты исследования процессов фотоиндуцированного поглощения и формирования коротко- и долгоживущих голографических решеток в фоторефрактивных кристаллах силиката висмута (BSO) со сложной структурой дефектных центров в условиях импульсного лазерного возбуждения.

Фотоиндуцированное поглощение

Фотоиндуцированное поглощение в кристаллах семейства силленитов в видимой и ближней ИК областях спектра определяется заселением ловушечных уровней, лежащих в запрещенной зоне кристалла. Наличие таких уровней актуально для силленитов вследствие присутствия в кристаллах плохо контролируемых примесей и дефектов, существенно влияющих на положение и вероятности заселения коротко- и долгоживущих ловушек. Исследование динамики наведенного поглощения позволяет проанализировать процессы, происходящие в кристаллах при импульсном лазерном воздействии. На рис. 1 представлена типичная осциллограмма прошедшего через кристалл силиката висмута излучения на длине волны 632.8 нм (гелий-неоновый лазер) после воздействия лазерного импульса длительностью 20 нс на длине волны 532 нм. Видно существенное уменьшение прошедшей интенсивности на временах порядка сотен миллисекунд, причем можно выделить этап быстрого (~ 10 мс) уменьшения наведенного поглощения и этап медленной релаксации (> 100 мс).

Для описания процессов, происходящих в кристалле силиката висмута при импульсном лазерном возбуждении, воспользуемся схемой энергетических состояний и процессов фотовозбуждения и релаксации, представленной на рис. 2 [19]. Наведенное поглощение определяется переходами электронов из валентной зоны 1 в зону проводимости 4 с последующей рекомбинацией на короткоживущие 3 и долгоживущие 2 энергетические уровни (ловушки), расположенные в запрещенной зоне. Ширина запрещенной зоны для кристалла титаната висмута составляет 3.08 эВ, что не позволяет осуществить прямой межзонный переход при поглощении фотонов на длине волны 532 нм (энергия кванта 2.33 эВ), используемой в эксперименте. Для объяснения поглощения мощных

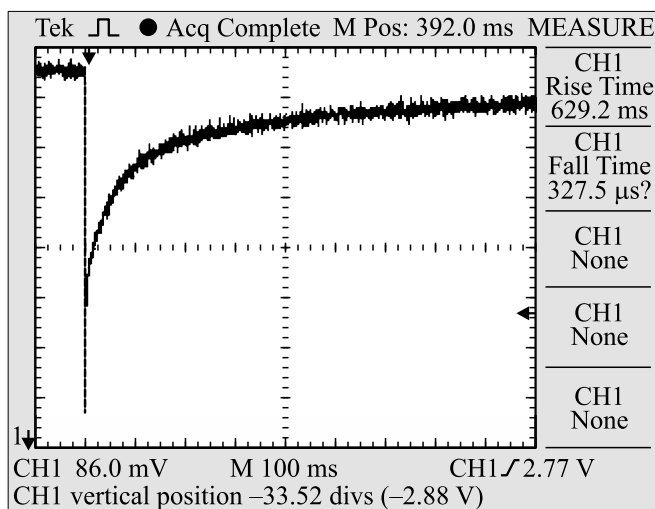


Рис. 1. Характерная осциллограмма прошедшего через кристалл BSO излучения после воздействия лазерного импульса с интенсивностью 5 MW/cm².

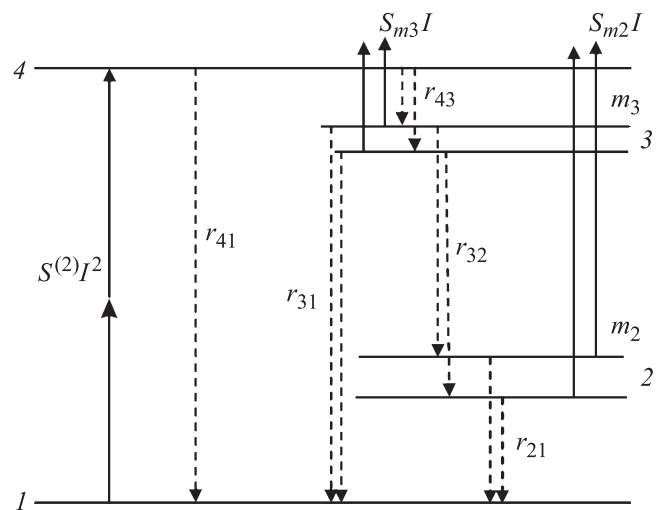


Рис. 2. Схема энергетических уровней и процессы фотовозбуждения, рекомбинации и захвата подвижных электронов в кристалле силиката висмута.

лазерных импульсов в рассмотрение включен механизм двухквантового поглощения света, скорость переходов при котором пропорциональна квадрату интенсивности падающего излучения.

Для описания фотоиндуцированного поглощения воспользуемся системой уравнений, полученной с учетом однофотонного поглощения электронами из ловушечных уровней и двухквантовыми переходами из валентной зоны в зону проводимости [19]:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\gamma}{2\hbar} I_0^2 + m_3 S_{m3} I + m_2 S_{m2} I - r_{41} n p - r_{43} n (M_3 - m_3), \quad (1)$$

$$\frac{\partial m_3}{\partial t} = -m_3 S_{m3} I + r_{43} n (M_3 - m_3) - r_{32} m_3 (M_{32} - m_2) - r_{31} m_3 p, \quad (2)$$

$$\frac{\partial m_2}{\partial t} = -m_2 S_{m2} I + r_{32} m_3 (M_2 - m_2) - r_{21} m_2, \quad (3)$$

где n — концентрация электронов в зоне проводимости, m_2 и m_3 — концентрации электронов на долгоживущем и короткоживущем уровне соответственно, M_2 и M_3 — полные концентрации долгоживущих и короткоживущих ловушек, p — концентрация дырок в валентной зоне, γ — коэффициент двухквантового поглощения, S_{m2} и S_{m3} — сечения фотоионизации с соответствующих ловушечных уровней, r_{ij} — коэффициенты рекомбинации.

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

$$p = n + m_2 + m_3. \quad (4)$$

Для удобства анализа процессов заселения и релаксации ловушечных уровней с учетом большого разброса

скоростей переходов между различными состояниями с характерными временами жизни от микросекунд до десятков часов выделим несколько этапов.

Первый этап — возбуждение. Электроны из валентной зоны и ловушечных уровней при поглощении квантов света переходят в зону проводимости. На рис. 2 этому соответствуют переходы 1–4, 2–4, 3–4. Система уравнений (1)–(3) преобразуется к виду

$$\frac{n}{\partial t} = \gamma 2\hbar I_0^2 + m_3 S_{m3} I_0 + m_2 S_{m2} I_0, \quad (5)$$

$$\frac{m_3}{\partial t} = -m_3 S_{m3} I_0, \quad (6)$$

$$\frac{\partial m_2}{\partial t} = -m_2 S_{m2} I_0. \quad (7)$$

Время жизни электронов в зоне проводимости крайне мало из-за большой скорости рекомбинации. В результате электроны возвращаются в валентную зону или переходят на короткоживущий уровень 3, лежащий вблизи зоны проводимости. Эти переходы можно считать вторым этапом (нано-, микросекундная релаксация) и описать уравнениями

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -r_{41} n p - r_{43} n (M_3 - m_3), \quad (8)$$

$$\frac{\partial m_3}{\partial t} = r_{43} n (M_3 - m_3). \quad (9)$$

Третий этап, происходящий за миллисекунды, — релаксация, отвечающая переходу 3–1:

$$\frac{\partial m_3}{\partial t} = -r_{31} m_3 p. \quad (10)$$

При этом часть электронов захватывается долгоживущими ловушками (переход 3–2). Такой процесс имеет меньшую вероятность, но позволяет заселять долгоживущие уровни 2 с временем жизни несколько десятков часов при использовании большого количества лазерных импульсов [9].

При дальнейшем рассмотрении остановимся на уравнении (10), решение которого в приближении малой населенности долгоживущих ловушек ($m_2 = 0$ и $m_3 = p$) можно представить в виде

$$m_3 = \frac{m_{30}}{1 + t/\tau}, \quad (11)$$

где m_{30} — начальная концентрация электронов на ловушечном уровне, τ — характерное время жизни, которое обратно пропорционально коэффициенту рекомбинации r_{31} .

Однако данная зависимость испытывает существенные расхождения с полученными экспериментальными данными при малых временах жизни (менее 10 ms). Учитывая большое количество разнообразных примесных и дефектных центров, характерных для кристаллов силиката висмута, для объяснения наблюдаемых расхождений предложено разбить ловушечный уровень 3

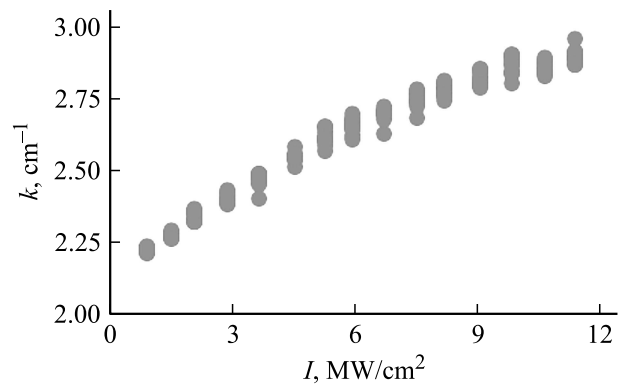


Рис. 3. Зависимость коэффициента поглощения от интенсивности импульсного излучения для кристалла BSO.

на два подуровня 3, *a* и 3, *b* с различными временами жизни. Для подуровня с меньшим временем жизни 3, *a* решение уравнения (5) в условиях заметного заселения долгоживущего подуровня 3, *b* можно представить в виде

$$m_{3a} = m_{3a0} \exp(-t/\tau_{3a}). \quad (12)$$

Для подуровня с большим временем жизни

$$m_{3b} = \frac{m_{3b0}}{1 + t/\tau_b}. \quad (13)$$

С учетом уравнений (12), (13) коэффициент поглощения, связанный с заселением указанных подуровней, можно представить в виде

$$k = k_{3a0} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{3a}}\right) + \frac{k_{3b0}}{1 + t/\tau_{3b}}, \quad (14)$$

где k_{3a0} , k_{3b0} — начальные коэффициенты поглощения, связанные с соответствующими подуровнями, τ_{3a} и τ_{3b} — их времена жизни.

Как показал количественный анализ зарегистрированных осциллограмм, приведенное выражение удовлетворительно описывает экспериментальные результаты и может быть использовано для определения характерных времен релаксации.

На рис. 3 представлена зависимость коэффициента поглощения от интенсивности падающего излучения. Видно, что фотоиндуцированное поглощение эффективно проявляется при интенсивностях, превышающих 1 МВт/см², причем при интенсивностях более 10 МВт/см² происходит насыщение роста наведенного поглощения. Для нахождения характерных времен релаксации используем формулу (14). На рис. 4 представлены зависимости времени релаксации для ловушечных подуровней от интенсивности лазерного излучения. С увеличением интенсивности наблюдается уменьшение времени релаксации, которое выходит на постоянное значение при интенсивностях, превышающих 5 МВт/см². При этом быстрые процессы релаксации характеризуются временами на уровне нескольких миллисекунд, а

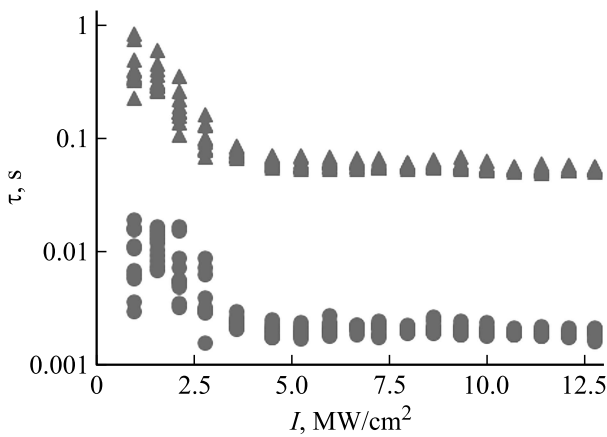


Рис. 4. Зависимость времени релаксации ловушечных уровней от интенсивности падающего излучения.

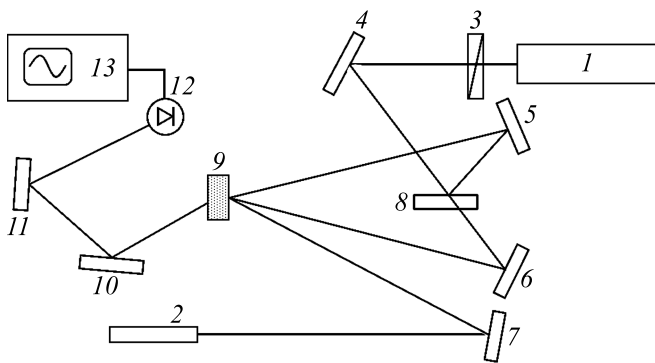


Рис. 5. Схема экспериментальной установки, где 1 — лазер на иттрий-алюминиевом гранате; 2 — гелий-неоновый лазер; 3 — полуволновая пластинка, 4–8, 10, 11 — зеркала; 9 — кристалл силиката висмута; 12 — скоростное фотоприемное устройство; 13 — цифровой осциллограф.

медленные процессы релаксируют с временами порядка 50 ms.

Импульсная запись динамических голограмм

Проведенные исследования фотоиндуцированного поглощения в кристаллах силиката висмута позволили определить условия записи динамических голограмм при импульсном лазерном возбуждении. Для исследования динамики заселения и релаксации голографических решеток была использована экспериментальная установка, представленная на рис. 5.

В экспериментах использовалась вторая гармоника импульсного лазера на иттрий-алюминиевом гранате с неодимом с $\lambda = 532 \text{ nm}$ и длительностью импульса 20 ns, маломощный непрерывный гелий-неоновый лазер и скоростное фотоприемное устройство с временным разрешением 20 μs , а также цифровой осциллограф с

частотой 200 MHz. Система зеркал 10, 11 и светофильтры на входе фотодетектора 12 использовались для исключения вклада мощного импульсного излучения Nd:YAG-лазера в результате эксперимента за счет пространственного и спектрального разделения дифрагированного пучка и импульсных пучков, формирующих голограмму.

Характерные осциллограммы дифрагированного излучения представлены на рис. 6. Детальный анализ осциллограмм на различных временных масштабах позволил выявить два механизма формирования динамических голограмм с временами релаксации, отличающимися на три порядка. При сравнительно небольших интенсивностях, порядка 1 MW/cm², имеем дифрагированный сигнал с временем релаксации на уровне нескольких секунд. При интенсивностях, превышающих 5 MW/cm², появляется быстрая компонента с временем релаксации на уровне миллисекунд. Вклад быстрого механизма записи динамических голограмм доминирует при больших интенсивностях лазерного излучения, превышающих 10–15 MW/cm². Такую закономерность иллюстрирует рис. 7, на котором представлены зависимости времени формирования медленной компоненты решетки (a) и отношения амплитуд медленной и быстрой компонент динамической голограммы (b) от интенсивности записываемого голограмму излучения.

Количественный анализ динамики релаксации медленной и быстрой компонент динамической решетки показал, что удовлетворительная аппроксимация имеет место при использовании формулы, подобной (14) с разделением дифрагированного сигнала на две компоненты. На рис. 8 представлены зависимости времени релаксации быстрой и медленной компонент динамической решетки от интенсивности записываемого голограмму лазерного излучения. Видно, что времена релаксации медленной компоненты составляют секунды. В то же время быстрая компонента, которая появляется при интенсивностях более 5 MW/cm², имеет характерные времена на уровне миллисекунд, причем при больших интенсивностях заметный вклад дает быстрая составляющая на уровне 100 μs .

Заключение

Таким образом, в работе проведены экспериментальные исследования динамики фотоиндуцированного поглощения и записи динамических голограмм в фоторефрактивных кристаллах силиката висмута мощными лазерными импульсами длительностью 20 ns на длине волны 532 nm. Показано, что наведенное поглощение заметно проявляется при интенсивностях, превышающих 1 MW/cm², при этом заселяются короткоживущие ловушечные уровни с временами релаксации на уровне единиц и десятков миллисекунд. В этих условиях реализована запись динамических голограмм и показана возможность формирования голографических решеток

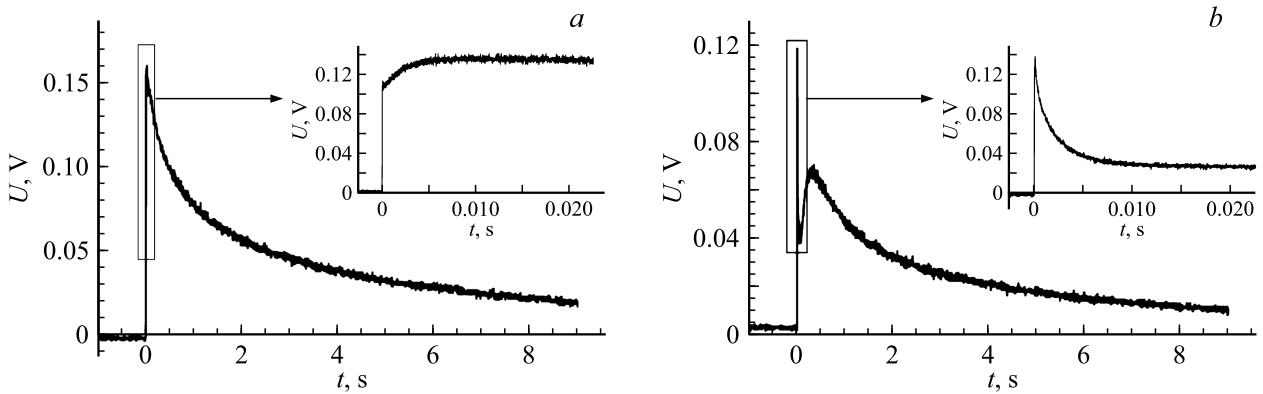


Рис. 6. Осциллограммы дифрагированного сигнала при интенсивности лазерного излучения 3 MW/cm^2 (a) и 15 MW/cm^2 (b).

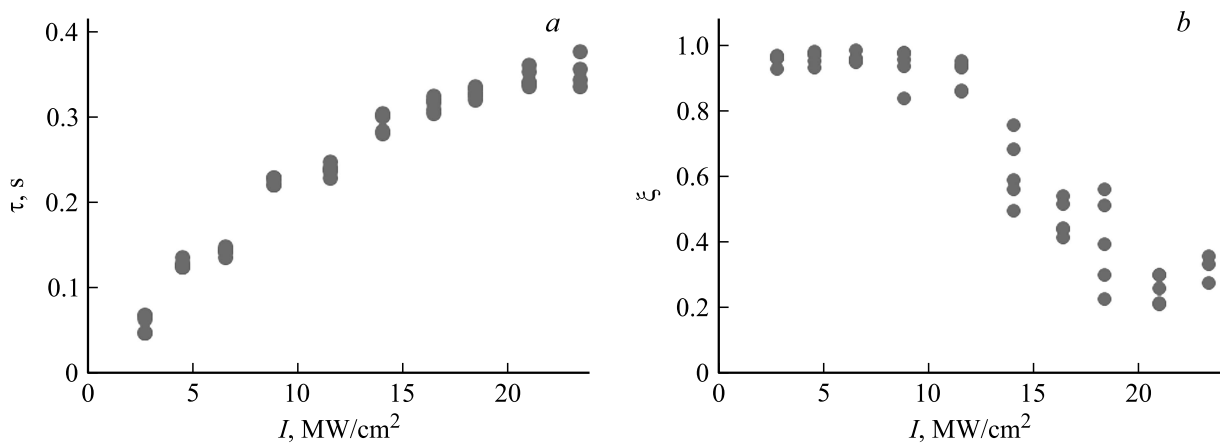


Рис. 7. Зависимости времени формирования долгоживущей решетки (a) и коэффициента, характеризующего отношение амплитуд медленной и быстрой компонент динамической голограммы (b), от интенсивности лазерного излучения.

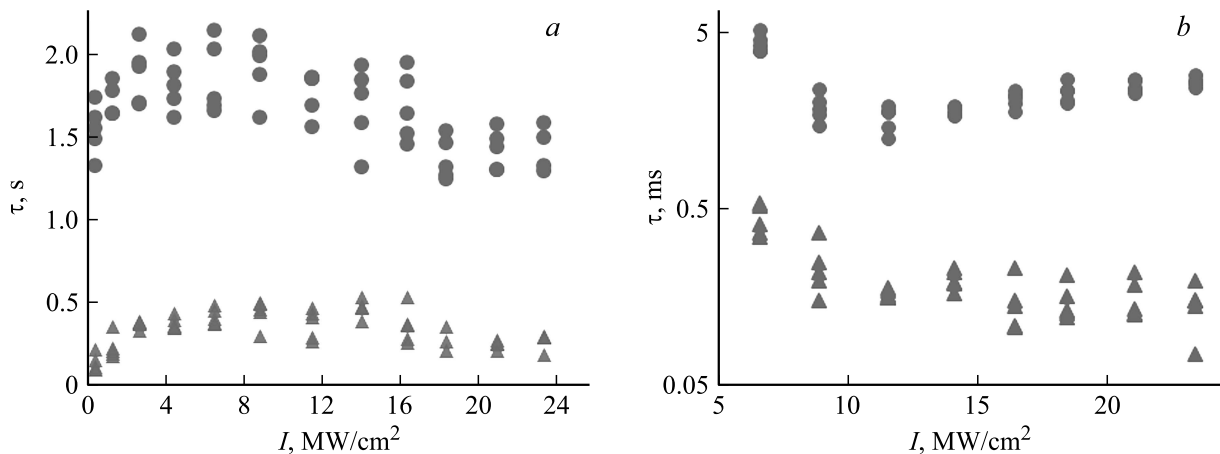


Рис. 8. Зависимость времени релаксации быстрой и медленной компонент динамической решетки от интенсивности записывающего голограмму лазерного излучения.

как с временами на уровне миллисекунд, так и на уровне секунд. Сравнение динамики релаксации фотоиндуцированного поглощения и голографических решеток позволило сделать вывод, что быстрый механизм формирования динамических решеток можно связать с заселением

короткоживущих ловушечных уровней с миллисекундными временами релаксации. Второй механизм записи решеток с временами релаксации на уровне секунд связан с формированием фоторефрактивной нелинейности в поле пространственного заряда. Установлено, что при

больших интенсивностях преимущественно заселяются короткоживущие ловушки, препятствующие диффузии электронов в зоне проводимости и формированию пространственного заряда, связанного с долгоживущими ловушечными уровнями.

Список литературы

- [1] Петров М.П., Степанов С.И., Хоменко А.В. Фоторефрактивные кристаллы в когерентной оптике. СПб.: Наука, 1992.
- [2] Jones D.C., Lyuksyutov S.F., Solyman L. // *Appl. Phys. B*. 1991. V. 52. P. 173–175. doi 10.1007/bf00750947
- [3] Buse K. // *Appl. Phys. B: Lasers a. Optics*. 1997. V. 64. N 3. P. 273–291. doi 10.1007/s003400050175
- [4] Nazhestkina N.I., Kamsyilin A.A., Kobozev O.V., Prokofiev V.V. // *Appl. Phys. B*. 2001. V. 72. N 6. P. 767–773.
- [5] Каргин Ю.Ф., Бурков В.И., Марьин А.А., Егорышев А.В. Кристаллы $\text{Bi}_{12}\text{Si}_x\text{O}_{20-\delta}$ со структурой силленита. Синтез, строение, свойства. М.: Изд-во ИОХН РАН, 2004.
- [6] Шандаров С.М., Буримов Н.И., Кульчин Ю.Н., Ромашко Р.В., Толстик А.Л., Шепелевич В.В. // *Квант. электрон.* 2008. Т. 38. № 11. С. 1059–1069; Shandarov S.M., Burimov N.I., Kul'chin Yu.N., Romashko R.V., Tolstik A.L., Shepelevich V.V. // *Quantum Electronics*. 2008. V. 38. N 11. P. 1059–1069. doi 10.1070/qe2008v038n11abeh013793
- [7] Pochi Yeh. *Introduction to Photorefractive Nonlinear Optics*. NY: Wiley, 1993.
- [8] Wevering S., Imbrock J., Kratzig E. // *J. Opt. Soc. Am. B*. 2001. V. 18. P. 472–478. doi 10.1364/josab.18.000472
- [9] Matusevich A., Tolstik A., Kisteneva M., Shandarov S., Matusevich V., Kiessling A., Kowarschik R. // *Appl. Phys. B*. 2008. V. 92. N 2. P. 219–224. doi 10.1007/s00340-008-3098-z
- [10] Matusevich A., Tolstik A., Kisteneva M., Shandarov S., Matusevich V., Kiessling A., Kowarschik R. // *Appl. Phys. B*. 2009. V. 96. N 1. P. 119–125. doi 10.1007/s00340-009-3512-1
- [11] Кистенева М.Г., Акрестина А.С., Сивун Д.О., Киселев Р.В., Шандаров С.М., Смирнов С.В., Толстик А.Л., Агишев И.Н., Станкевич А.В., Каргин Ю.Ф. // Докл. Томского государственного университета систем управления и радиоэлектроники. 2010. Т. 22. № 2. Ч. 2. С. 62–65.
- [12] Khudyakova E.S., Kisteneva M.G., Shandarov S.M., Kornienko T.A., Tolstik A.L., Kargin Yu.F. // *Radiophysics and Quantum Electronics*. 2015. V. 57. N 8–9. С.589–594. doi 10.1007/s11141-015-9543-z
- [13] Kornienko T., Kisteneva M., Shandarov S., Tolstik A. // *Phys. Proc.* 2017. V. 86. P. 105–112. doi j.phpro.2017.01.029
- [14] Толстик А.Л., Матусевич А.Ю., Кистенева М.Г., Шандаров С.М., Иткин С.И., Мандель А.Е., Каргин Ю.Ф., Кульчин Ю.Н., Ромашко Р.В. // *Квант. электрон.* 2007. Т. 37. № 11. С. 1027–1032; Tolstik A.L., Matusevich A.Yu., Kisteneva M.G., Shandarov S.M., Itkin S.I., Mandel' A.E., Kargin Yu.F., Kul'chin Yu.N., Romashko R.V. // *Quantum Electronics*. 2007. V. 37. N 11. P. 1027–1032. doi 10.1070/qe2007v037n11abeh013371
- [15] Hermann J.P., Hériau J.P., Huignard J.P. // *Appl. Opt.* 1981. V. 20. P. 2173–2174. doi 10.1364/AO.20.002173
- [16] Partanen J.P., Nouchi P., Jonathan J.M.C., Hellwarth R.W. // *Phys. Rev. B*. 1991. V. 44. P. 1487–1491. doi 10.1103/physrevb.44.1487
- [17] Murillo J.G. // *Optics Commun.* 1999. V. 159. P. 293–300. doi 10.1016/s0030-4018(98)00610-5
- [18] Станкевич А.В., Толстик А.Л., Хайдер Х.К. // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. № 16. С. 7–14; Stankevich A.V., Tolstik A.L., Haider H.K. // *Technical Physics Letters*. 2011. V. 37. P. 746–749. doi 10.1134/s1063785011080268
- [19] Толстик А.Л., Ханон Х.К. // Вестник Белорусского государственного университета. Сер. 1. Физика. Математика. Информатика. 2012. № 2. С. 3–7.