

УДК 535.34

ХАНОН ХАЙДЕР КАМЕЛ (ИРАК), А. В. СТАНКЕВИЧ, А. Л. ТОЛСТИК

СПЕКТРАЛЬНЫЕ ОСОБЕННОСТИ ФОТОХРОМНОГО ЭФФЕКТА В КРИСТАЛЛАХ ТИТАНАТА ВИСМУТА ПРИ ИМПУЛЬСНОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

The paper presents the spectral dependences for the induced absorption in bismuth titanate crystals when excited by nanosecond pulses at the wavelengths ranging 500÷600 nm. It is found that the induced absorption is growing with a decrease in the wavelength and with an increase in the excitation radiation intensity, the irradiation dose being invariable. The existence of a limiting wavelength, over which no photochromic effect is exhibited, is demonstrated. The proposed theoretical model including single-photon absorption from the intermediate trapping level and two-quanta absorption from the valence zone supports the experimental results.

Фоторефрактивные кристаллы семейства силленитов, к которым относится титанат висмута, – признанные фоторефрактивные среды, в которых эффект фоторефракции проявляется в видимой области спектра при небольшой мощности лазерного излучения [1]. Областью применения фоторефрактивных кристаллов является квантовая электроника (лазеры на динамических решетках, синхронизация излучения полупроводниковых лазеров) [2, 3], голографическая интерферометрия [4], системы оптической обработки информации [5], устройства оптической памяти [6], волноводные элементы [7]. К фоторефрактивным материалам предъявляются такие важные требования, как высокая чувствительность в широком спектральном диапазоне, возможность управления нелинейными свойствами. С целью расширения спектральной области чувствительности силленитов предложено использовать предварительное облучение в видимой области спектра [8]. При этом заселение ловушечных уровней в запрещенной зоне позволяет существенно увеличить поглощение в «красной» и ближней ИК-области [9, 10]. Однако лазерное облучение может приводить как к затемнению, так и к просветлению предварительно затемненного кристалла [11, 12]. В условиях лазерного возбуждения нано- и пикосекундными импульсами был обнаружен пороговый характер зависимости фотохромного эффекта от интенсивности и определены его пороговые значения [13]. При этом были зафиксированы существенные различия величины наведенного поглощения для нано- и пикосекундных лазерных импульсов. Поэтому анализ спектральных особенностей фотохромного эффекта в зависимости от условий лазерного возбуждения представляется актуальным для определения оптимальных режимов управления фоторефрактивными свойствами регистрирующих сред в широком спектральном диапазоне.

В настоящей работе проведены экспериментальные исследования фотохромного эффекта в кристаллах титаната висмута при их облучении лазерными наносекундными импульсами различной интенсивности и на различных длинах волн (500÷600 нм). Предложена теоретическая модель, объясняющая полученные результаты.

Для изучения эффекта наведенного поглощения использовались нелегированные кристаллы титаната висмута $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ (ВТО), которые характеризуются высокой светочувствительностью в видимой

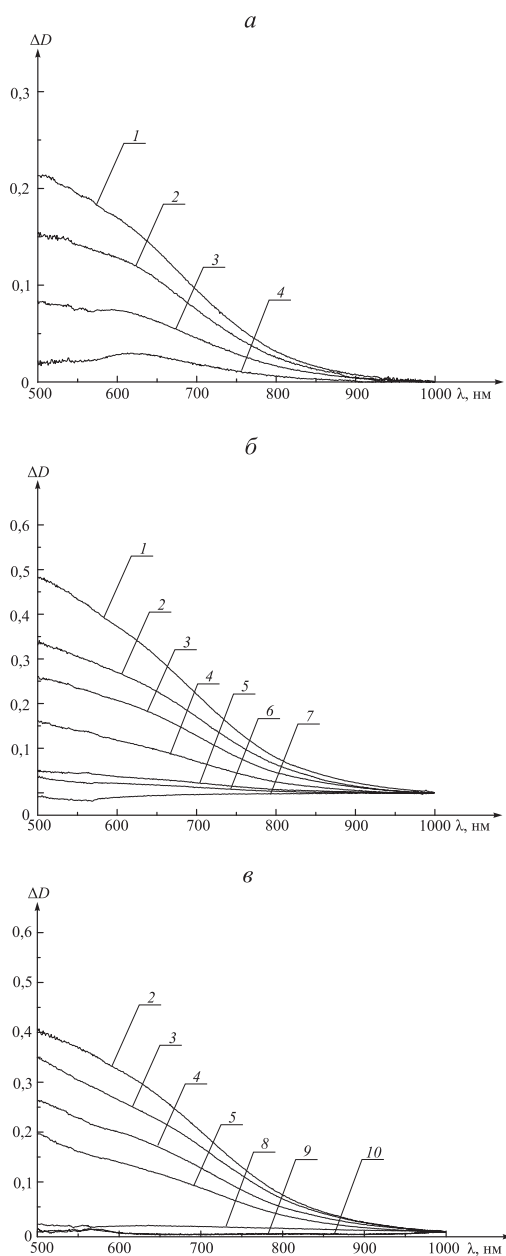


Рис. 1. Спектральные зависимости наведенной оптической плотности кристалла ВТО при интенсивности возбуждающего излучения (kBt/cm^2): 100 (а), 400 (б), 800 (в) на длине волны (нм): 500 (1), 510 (2), 520 (3), 530 (4), 540 (5), 550 (6), 560 (7), 570 (8), 580 (9), 590 (10) и экспозиции $500 \text{ Дж}/\text{cm}^2$

области спектра и подвижностью носителей заряда, позволяющей достичь малых времен нелинейного отклика. Кроме того, кристаллы титаната висмута по сравнению с другими кристаллами семейства силленитов имеют более высокий электрооптический коэффициент и меньшую оптическую активность. Толщина кристаллов составляла 1,5 мм. Образцы ВТО при проведении эксперимента содержались при естественном освещении без соблюдения строгих мер внешней светоизоляции. Для облучения использовался параметрический генератор света, накачиваемый третьей гармоникой лазера на иттрий-алюминиевом гранате. Длительность импульса составляла 20 нс, спектральная ширина – менее 1 нм, частота следования импульсов – 10 Гц, энергия импульса – от 1 до 10 мДж в зависимости от длины волны генерации. Для обеспечения равномерной засветки кристалла пространственно однородная часть лазерного излучения вырезалась диафрагмой 2,5 мм. Параметрический генератор света позволял плавно изменять длину волны излучения λ от 410 до 2150 нм, что в полной мере обеспечивало эффективное фотоиндуцированное поглощение кристаллов ВТО, край фундаментального поглощения которых составлял 403 нм [14]. Исходя из проведенных ранее экспериментов с использованием для затемнения наносекундных импульсов на длине волны 532 нм [13], экспозиция была выбрана равной $500 \text{ Дж}/\text{cm}^2$. Во всех экспериментах изменялась только интенсивность и длина волны возбуждающего излучения. Средняя мощность на входной грани кристалла составляла $1 \div 8 \text{ мВт}$, что соответствовало диапазону пиковой интенсивности $I = 0,1 \div 0,8 \text{ МВт}/\text{cm}^2$.

В процессе лазерного облучения в кристалле формировалась дефектная область, отличающаяся пропусканием в видимой и ближней ИК-области спектра. Спектры поглощения регистрировались на спектрометре «Solar PV1251С», позволяющем измерять оптическую плотность в спектральном диапазоне от 410 до 1000 нм с абсолютной точностью по оптической плотности 0,02 и снимать показания через каждый нанометр. Величина наведенного поглощения определялась как разность спектров кристалла после и до облучения. Спектральные зависимости наведенного поглощения ΔD , полученные при различных интенсивностях и длинах волн возбуждающего излучения, представлены на рис. 1. Из рисунка видно, что спектр поглощения среды при лазерном облучении изменяется плавно в пределах от 500 до 900 нм. Эффект заметен для всех используемых интенсивностей, однако с увеличением интенсивности расширяется спектральный диапазон длин волн, приводящих к оптическому затемнению.

Величина наведенного поглощения увеличивается при уменьшении длины волны и приближении к краю фундаментального поглощения. В то же время имеет место длинноволновая граница, за пределами которой лазерное облучение не приводит к оптическому затемнению. Из сравнения зависимостей, полученных при различных интенсивностях возбуждающего излучения, граничная длина волны зависит от интенсивности. Так, например, при интенсивности $0,1 \text{ МВт}/\text{cm}^2$ (рис. 1 а) фотохромный эффект практически не наблюдается при облучении кристалла излучением с длиной волны свыше 530 нм. При интенсивности $0,4 \text{ МВт}/\text{cm}^2$ граничная длина волны составила 550 нм (рис. 1 б), а при $0,8 \text{ МВт}/\text{cm}^2$ граница сместилась к 570 нм (рис. 1 в).

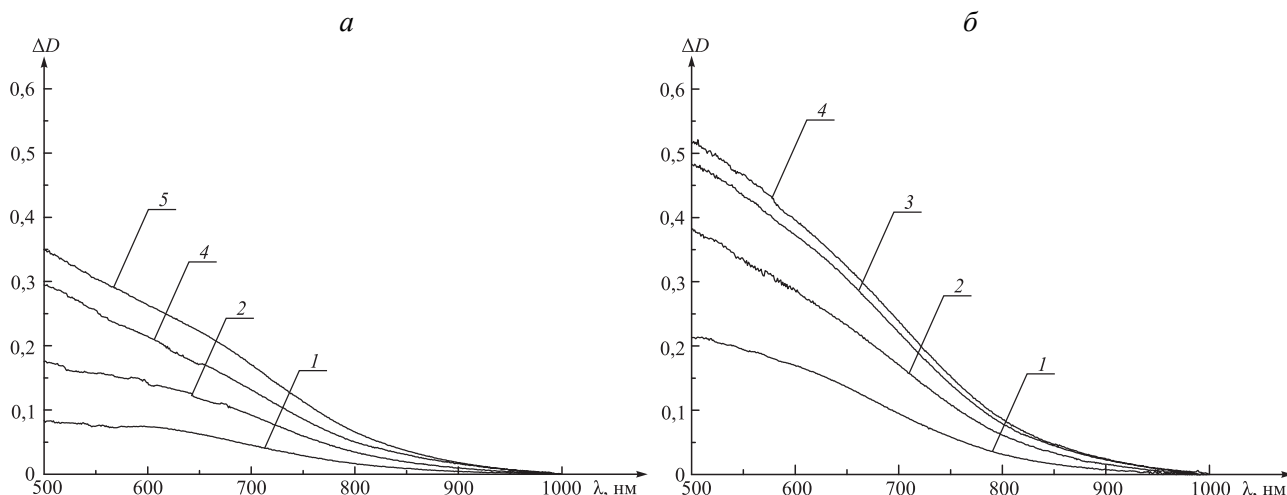


Рис. 2. Спектральные зависимости наведенной оптической плотности кристалла ВТО при засветке на длине волны 500 (а) и 520 нм (б) и интенсивности возбуждающего излучения (кВт/см²): 100 (1), 200 (2), 400 (3), 600 (4), 800 (5)

При фиксированной длине волны возбуждающего излучения величина наведенного поглощения существенно зависит от интенсивности. Как видно из рис. 2, увеличение интенсивности в диапазоне от 0,1 до 0,8 МВт/см² приводит вначале к линейному росту наведенного поглощения, а затем к его насыщению. Причем максимально достижимая величина наведенного поглощения зависит от длины волны возбуждающего излучения. На рис. 3 точками представлены пересчитанные зависимости коэффициента поглощения от интенсивности для двух близкорасположенных длин волн (510 и 520 нм). Виден практически линейный рост коэффициента поглощения при небольших интенсивностях (до 0,2 МВт/см²) и насыщение с увеличением интенсивности и приближением к 0,8 МВт/см².

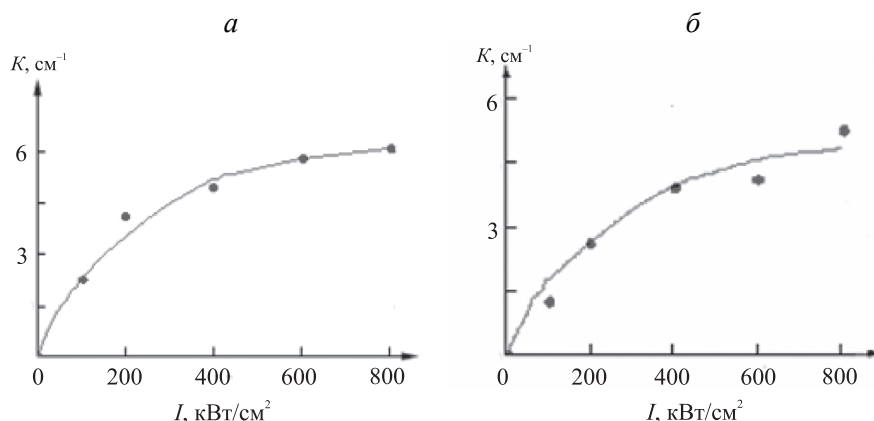


Рис. 3. Зависимости коэффициента наведенного поглощения от интенсивности возбуждающего излучения на длине волны 510 (а) и 520 нм (б)

Для объяснения полученных экспериментальных результатов предложена теоретическая модель, использующая заселение короткоживущих и долгоживущих энергетических уровней (ловушек), находящихся в запрещенной зоне кристалла. Расположение ловушечных уровней выше валентной зоны объясняет увеличение поглощения в длинноволновой (относительно края фундаментального поглощения) области спектра.

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 [12]:

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

$$\frac{\partial m_3}{\partial t} = -m_3 S_{m3} I + r_{43} n(M_3 - m_3) - r_{32} m_3 (M_2 - m_2) - r_{31} m_3 p, \tag{2}$$

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

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_{m_2} , S_{m_3} – 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.

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

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

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

$$K = h\nu (S_{m_2} m_2 + S_{m_3} m_3), \quad (5)$$

где h – постоянная Планка, ν – частота световой волны.

Используя систему кинетических уравнений (1) – (3) и уравнения (4), (5), можно рассчитать как динамику заселения и релаксации ловушечных уровней, так и величину наведенного поглощения. Расчеты проведем 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 используем данные работ [12, 15, 16] по динамике заселения ловушечных уровней: $Mr_{21} = 10^{-4} \text{ с}^{-1}$, $Mr_{31} = 10^3 \text{ с}^{-1}$, $Mr_{32} = 1 \text{ с}^{-1}$, $Mr_{41} = Mr_{43} = 10^7 \text{ с}^{-1}$. Сечения фотоионизации S_{m_2} и S_{m_3} , а также коэффициент двухфотонного поглощения γ зависят от длины волны и выбирались с использованием экспериментальных зависимостей (рис. 1–3).

Расчитанные теоретические зависимости представлены сплошными линиями на рис. 3. Расчеты были проведены при следующих параметрах, отвечающих условиям эксперимента: экспозиция 500 Дж/см^2 , длительность импульса 20 нс, частота следования импульсов 10 Гц. Видно удовлетворительное соответствие теоретических (сплошная линия) и экспериментальных (точки) результатов (см. рис. 3).

Таким образом, предложенная теоретическая модель, включающая однофотонное поглощение с промежуточного ловушечного уровня и двухквантовое поглощение из валентной зоны, позволила объяснить наблюдаемую в эксперименте зависимость коэффициента наведенного поглощения в фоторефрактивных кристаллах титаната висмута от интенсивности. Установлено, что величина наведенного поглощения увеличивается при уменьшении длины волны и росте интенсивности возбуждающего излучения при сохранении дозы облучения. Показано существование предельной длины волны, выше которой фотохромный эффект не проявляется.

1. Петров М. П., Степанов С. И., Хоменко А. В. Фоторефрактивные кристаллы в когерентной оптике. СПб., 1992.

2. Feinberg J. // Opt. Lett. 1982. Vol. 7. P. 486.

3. MacCormack S., Feinberg J., Garrett M. H. // Ibid. 1994. Vol. 19. P. 120.

4. Barbosa E. A., Frejlich J., Prokofiev V. V. et al. // Opt. Engin. 1994. Vol. 33. P. 2659.

5. Leyva V., Rakuljic G. A., O'Conner B. // Appl. Phys. Lett. 1994. Vol. 65. P. 1079.

6. Mok F. H. // Opt. Lett. 1993. Vol. 18. P. 915.

7. Chiou A. E. T., Yeh P., Yang C., Gu C. // Ibid. 1995. Vol. 20. P. 1125.

8. Толстик А. Л., Матусевич А. Ю., Кистенева М. Г. и др. // Квантовая электроника. 2007. Т. 37. С. 1027.

9. Малиновский В. К., Гудаев О. А., Гусев В. А., Деменко С. И. Фотоиндуцированные явления в силленитах. Новосибирск, 1990.

10. Веретенников С. Ю., Мандель А. Е., Шандаров С. М. и др. // Изв. вузов. Физика. 2003. № 2. С. 39.

11. Мартыанов А. Г., Агеев Е. Ю., Шандаров С. М. и др. // Квант. электроника. 2003. Т. 33. С. 226.

12. Толстик А. Л., Хайдер Х. К. // Вестн. БГУ. Сер. 1. 2012. № 2. С. 3.

13. Станкевич А. В., Толстик А. Л., Хайдер Х. К. // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. № 16. С. 7.

14. Егорышева А. В. // Журн. неорган. химии. 2005. Т. 50. № 3. С. 461.

15. Matusevich A., Tolstik A., Kisteneva M. et al. // Applied Physics B. 2008. Vol. 92. P. 219.

16. Matusevich A., Tolstik A., Kisteneva M. et al. // Ibid. 2009. Vol. 96. P. 119.

Поступила в редакцию 20.06.12.

Ханон Хайдер Камел – аспирант кафедры лазерной физики и спектроскопии. Научный руководитель – А. Л. Толстик.

Андрей Витальевич Станкевич – аспирант кафедры лазерной физики и спектроскопии. Научный руководитель – А. Л. Толстик.

Алексей Леонидович Толстик – доктор физико-математических наук, профессор, проректор по учебной работе.