

Фотоиндуцированные решетки в сегнетоэлектрическом кристалле $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ с зависящим от интенсивности оптической накачки периодом

П. А. Прудковский⁺¹⁾, К. А. Брехов*, К. А. Гришунин*, К. А. Кузнецов⁺, Е. Д. Мишина*, М. С. Фокин⁺, Г. Х. Китаева⁺

⁺ Физический факультет, МГУ им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

*Московский технологический университет (МИРЭА), 119434 Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 июля 2016 г.

После переработки 14 декабря 2016 г.

Обнаружено рассеяние света в форме кольцевых структур, возникающее в кристаллах $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ при распространении излучения мощной лазерной накачки вдоль кристаллографической оси b . Проходящее через кристалл излучение полностью рассеивается в конус, угол раствора которого растёт с увеличением мощности накачки и обратимо уменьшается при ее снижении. Наблюдаемый эффект может быть объяснен спонтанным ростом амплитуды фотоиндуцированных объемных дифракционных решеток и рассеянием на них света в направлениях, в которых фазовые набег фоторефрактивной и дифракционной природы взаимно компенсируют друг друга. Сходный тип рассеяния наблюдался ранее в других фоторефрактивных кристаллах, однако возникновение решеток с периодом, легко варьируемым изменением мощности накачки, демонстрируется впервые.

DOI: 10.7868/S0370274X17030031

Когда при волновом смещении в нелинейной среде возникает излучение, не являющееся результатом сложения или вычитания волновых векторов мод накачки, это всегда вызывает интерес, и, как правило, указывает на развитие некой неустойчивости в среде. В приложении к фоторефрактивным средам интерес возрастает, потому что рождение новых мод света сопровождается записью в среде объемных дифракционных решеток. Хорошо известно, что в фоторефрактивных кристаллах возможен спонтанный рост шумовых решеток, который приводит к развитию так называемого фотоиндуцированного рассеяния света (ФИРС) – рассеяния света в широкий конус света, сопровождающегося помутнением кристалла в месте прохождения накачки (optical damage) [1–6]. Концы волновых векторов шумовых решеток при этом лежат на некоторой сфере, т.е. их множество является двумерным. Обычно наибольшую амплитуду имеют решетки с малыми волновыми векторами, почти перпендикулярными волновому вектору накачки. В случае выполнения четырехволнового синхронизма возможно усиление одномерного подмножества решеток, рассеяние на которых проявляется в виде узкого конуса с углом раствора, опре-

деляемым условием синхронизма. Этот эффект был назван параметрическим рассеянием голографического типа (ПРГТ) [7–9].

Меньше известен более нетривиальный эффект – в поле двух встречных пучков накачки может происходить усиление решеток, волновой вектор которых почти параллелен волновым векторам накачки. Это явление было обнаружено как в средах с керровской нелинейностью [10], так и в фоторефрактивных кристаллах ниобата лития [11, 12], а позже – в кристаллах KNbO_3 [13, 14] и BaTiO_3 [15]. В этом случае речь идет о неустойчивости, приводящей к росту одномерного множества объемных решеток, соответствующих рассеянию света в виде узкого конуса под углом, для которого компенсируются фазовые набег дифракционной и нелинейной природы [16]. Иногда может также происходить усиление трех решеток, чьи поперечные компоненты волновых векторов образуют правильный треугольник, проявляющееся в рассеянии в виде точечных гексагональных структур [13–15, 17]. Наблюдение конической неустойчивости возможно и в схемах с одним пучком накачки [11–14], если встречный пучок возникает в результате отражения падающего излучения от дальней грани кристалла и усиливается за счет энергообмена с прямым пучком накачки [18]. Эффект в любом слу-

¹⁾e-mail: vysogota@gmail.com

чае является пороговым по интенсивности накачки, но аналитическое решение для порога неустойчивости [16, 17] может быть получено только для равных интенсивностей пучков накачки или для идеального отражения на задней грани кристалла и не описывает общего случая с произвольным соотношением между интенсивностями встречных пучков.

Данная работа посвящена наблюдению конической неустойчивости в схеме с одним пучком накачки в еще одном кристалле с фоторефрактивными свойствами – в $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ (SPS). Причем обнаруженное нами рассеяние обладает особенностью, не наблюдавшейся ранее: угол конуса рассеяния существенно зависит от интенсивности накачки и может варьироваться простым изменением мощности падающего излучения. Второй характерной особенностью наблюдаемого эффекта является возможность полной перекачки в конусы рассеяния энергии прошедшего в кристалл излучения.

Кристалл SPS характерен весьма интересным сочетанием физических свойств, в частности, достаточно эффективным и относительно быстрым фоторефрактивным откликом: в ряде экспериментов создание стационарных фоторефрактивных решеток происходило за времена порядка нескольких миллисекунд [19]. При комнатной температуре это сегнетоэлектрик-полупроводник (ширина запрещенной зоны 2.35 эВ [20]), но при незначительном нагреве до температуры $\sim 64^\circ\text{C}$ переходит в параэлектрическую фазу [21]. Для переполаризации доменов требуется достаточно небольшое коэрцитивное поле $\sim 750\text{ В/см}$ [22]. Оптические, нелинейно-оптические, кристаллографические, электронные, фоторефрактивные свойства, фононные, поляронные резонансы и дефекты в этом кристалле активно исследуются вплоть до настоящего времени [23–29].

Описание эксперимента. На рис. 1а изображена схема эксперимента, включающая титан-сапфировый лазер с длиной волны накачки, перестраиваемой в диапазоне 700–1000 нм, частотой повторения импульсов 80 МГц и длительностью импульсов ~ 100 фс. Направление вектора линейной поляризации накачки варьировалось с помощью полуволновой пластины. Лазерное излучение фокусировалось на кристалл толщиной около 0.5 мм с помощью линзы с фокусным расстоянием 10 см. Прошедшее через кристалл излучение попадало на экран, расположенный на расстоянии 25 см от образца, и его изображение регистрировалось на фотокамеру. Для наблюдения пространственной структуры отраженного излучения перед кристаллом ставилась полупрозрачная стеклянная

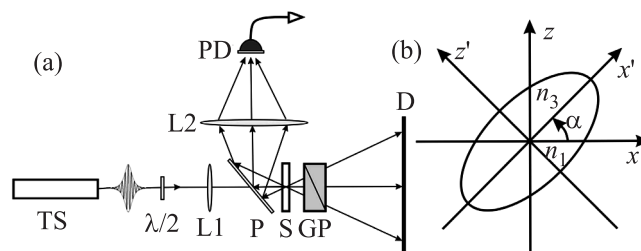


Рис. 1. (а) – Схема экспериментальной установки: TS – титан-сапфировый лазер, L – линзы, GP – призма Глана, D – экран, PD – фотодетектор, P – стеклянная пластинка, S – кристалл SPS. (б) – Кристаллографические оси кристалла SPS (ось Y направлена перпендикулярно плоскости рисунка) и эллипс показателей преломления в плоскости XZ

пластинка, отводящая часть отраженного излучения на второй экран, расположенный сбоку. Для отбора прошедшего через кристалл излучения по поляризации использовалась призма Глана. Входная и выходная грани кристалла были ориентированы перпендикулярно оси b элементарной ячейки кристалла, имеющей при комнатной температуре моноклинную точечную группу симметрии m . На рис. 1б отмечены кристаллографические оси SPS: взаимно-ортогональные оси X и Z лежат в плоскости входной и выходной грани, ось Y направлена вдоль нормали к входной грани. Известно, что кристалл SPS является оптически двуосным, причем одна из осей индикатрисы показателей преломления совпадает с осью Y, а две другие оси X' , Z' лежат в плоскости $\langle 010 \rangle$ и развернуты относительно кристаллографических осей Z, X на некоторый угол (α на рис. 1б), зависящий от температуры и длины волны излучения. Согласно [30], при комнатной температуре и в актуальном для наших измерений диапазоне длин волн накачек 700–1000 нм угол α меняется в небольших пределах $44\text{--}48^\circ$.

При малых мощностях падающего лазерного излучения, не превышающих 60 мВт по средней мощности и, соответственно, $I_p = 180\text{ мВт/см}^2$ по пиковой интенсивности, существенных искажений пространственной структуры прошедшего и отраженного луча нами не наблюдалось. Однако при дальнейшем росте мощности накачки на обоих экранах, фиксирующих структуру прошедшего и отраженного излучения, появлялись кольца, а след от прямого прохождения луча накачки на экране за кристаллом постепенно полностью исчезал. Отметим, что возникновение кольцевой структуры, т.е. развитие конической неустойчивости, наблюдалось при падении накачки на пластину кристалла только с одной двух возмож-

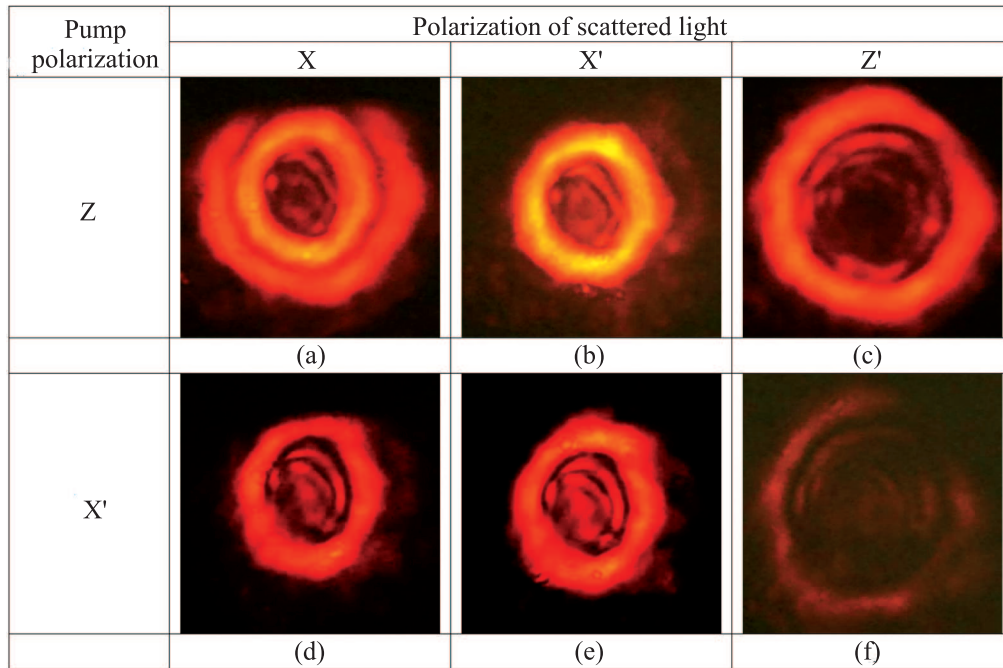


Рис. 2. (Цветной онлайн) Изображения рассеянного излучения, возникшего под действием накачки мощностью 110 мВт с длиной волны 700 нм, поляризованной вдоль кристаллографической оси Z (а–с) и оси X' оптической индикатрисы (d–f). Прошедшее излучение поляризовано вдоль кристаллографической оси X (a,d), вдоль оси X' оптической индикатрисы (b,e), вдоль оси Z' оптической индикатрисы (c,f)

ных сторон – при развороте образца на 180° никакого кольцевого рассеяния не наблюдалось. Это объясняется необходимостью возникновения встречного пучка света для развития неустойчивости: направление энергообмена между пучком накачки и встречным пучком света при развороте кристалла меняется на обратное [18]. В результате отраженный от задней грани кристалла пучок света при одной ориентации кристалла усиливается, а при противоположной – ослабляется.

На рис. 2 приведены изображения прошедшего через кристалл лазерного излучения с длиной волны 700 нм и фиксированной средней мощностью 110 мВт. Изображения на рис. 2а–с соответствуют поляризации падающего излучения вдоль кристаллографической оси кристалла Z , на рис. 2d–f вектор поляризации накачки той же мощности ориентирован почти параллельно одной из двух взаимно-перпендикулярных осей индикатрисы кристалла. Видно, что изображения прошедшего излучения состоят из 2-х концентрических колец, причем их поляризации взаимно ортогональны и соответствуют главным направлениям оптической индикатрисы: внутреннее кольцо на всех фотографиях поляризовано вдоль оси X' , а внешнее – вдоль Z' . Пока мощность накачки остается постоянной,

направление ее поляризации сказывается только на соотношении интенсивностей двух колец. Используя данные [30] о дисперсии главных значений показателя преломления кристалла, несложно показать, что раздвоение колец взаимно-ортогональной поляризации снаружи кристалла связано с преломлением волн на выходной поверхности, внутри же кристалла – это одно и то же кольцо.

Наиболее интересной особенностью наблюдаемой кольцевой структуры является прямая связь угла раствора конуса рассеяния θ с мощностью падающего излучения (рис. 3). Начиная с пороговой интенсивности и вплоть до достаточно больших значений мощности, радиус колец, наблюдаемых в прошедшем и отраженном свете, монотонно растет с ростом мощности. Время установления новой картины рассеяния после изменения мощности накачки варьировалось в пределах 0.1–1 с. На рис. 4 приведены экспериментальные зависимости угла раствора конуса рассеяния θ от интенсивности падающего на кристалл излучения, измеренные для различных длин волн накачки. Каждая из зависимостей на графике содержит участок, на котором угол рассеяния увеличивается с ростом интенсивности накачки, причем наклон зависимости тем больше, чем меньше длина волны накачки. Однако при достижении достаточно боль-

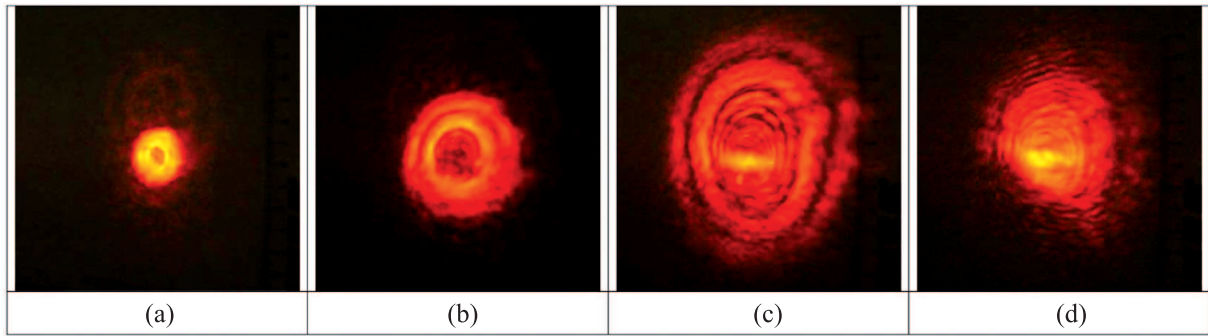


Рис. 3. (Цветной онлайн) Изменение кольцевых структур в рассеянном свете с ростом мощности накачки: (a) – 89 мВт, (b) – 113 мВт, (c) – 129 мВт, (d) – 150 мВт

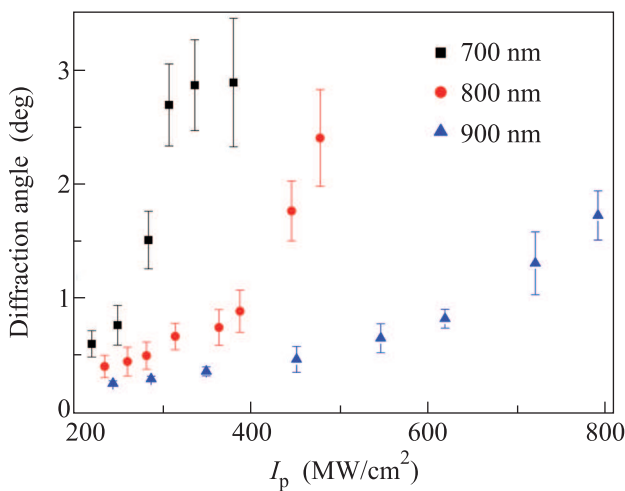


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость угла конуса рассеяния от интенсивности накачки с различными длинами волн

ших углов их рост прекращался, переход к этому режиму виден на рис. 4 для самой резкой зависимости, соответствующей длине волны накачки 700 нм. На этом участке наблюдалась иная картина установления стационарного распределения мощности прошедшего излучения: на временах, меньших или порядка 0.4 с, происходил рост радиуса кольца, а потом – резкий спад за время, меньшее 0.1 с. При некоторых значениях мощности на этой стадии в более протяженных образцах с толщиной ~ 3 мм наблюдались непрерывные пульсации радиусов колец с периодом порядка нескольких десятых долей секунд. В работе [11] сходное нестационарное поведение конического рассеяния света трактовалось как переход в автоволновой режим. Действительно, большая инерционность фоторефракции в принципе может приводить к автоволновым процессам, существенно меняющим динамику рассеяния [31]. Впрочем, другой причиной такого нестационарного поведения ко-

лец могло бы быть нагревание кристалла при высоких значениях мощности накачки, означающее приближение к точке фазового перехода. Дальнейшее увеличение мощности накачки приводило к распаду колец на мелкомасштабные структуры и появлению размытого пространственно-неоднородного пятна вместо колец на экране (см. рис. 3d). Наконец, при мощностях от 175 мВт и выше (для накачки с длиной волны 700 нм) сложная картина рассеяния полностью исчезала, и прошедшее излучение формировало пятно того же диаметра, что и падающая накачка.

Обсуждение результатов. Наблюдаемое нами рассеяние в форме кольцевых структур в кристаллах SPS сходно с ранее наблюдавшимся рассеянием в других фоторефрактивных кристаллах [11–15], однако имеет два важных отличия. Во-первых, во всех прежних работах интенсивность кольцевого рассеяния составляла малую долю от интенсивности накачки, тогда как в нашем случае луч накачки на выходе из кристалла полностью исчезает, т.е. накачка полностью перекачивается в кольца рассеяния. Во-вторых, в нашем случае наблюдается зависимость радиуса колец (т.е. поперечной компоненты волнового вектора q_{\perp} записанных в кристалле объемных решеток) от интенсивности накачки, тогда как во всех прежних работах радиус стационарных колец рассеяния был неизменен.

Как уже говорилось, в случае равной интенсивности встречных пучков для порога конической неустойчивости может быть получено аналитическое выражение [16, 17]. В кристалле SPS коэффициент отражения по интенсивности от задней грани кристалла составляет примерно 25%, поэтому встречный пучок накачки заведомо слабее прямого. В случае произвольного соотношения между интенсивностями пучков накачки порог неустойчивости можно получить путем численного решения уравнений, ана-

логичных полученным в работе [16]. Отметим, что речь идет о линейном анализе взаимодействия слабых мод рассеянного света в поле сильных неустойчивых встречных пучков накачки. На рис. 5 показана полученная таким образом величина инкремента нарастания конической неустойчивости в координатах $(q_{\perp}, \eta LI_p)$, где I_p – интенсивность накачки, L – длина кристалла, а параметр η описывает эффективность энергообмена между оптическими модами в кристалле за счет фоторефракции. Видно, что область неустойчивости с самой малой компонентой q_{\perp} возникает первой, а инкремент нарастания в ней при дальнейшем возрастании интенсивности остается самым большим. Поэтому неудивительно, что в работах [11–15] наблюдались кольцевые структуры, соответствующие неизменной минимально возможной поперечной компоненте волнового вектора. Однако, если накачка почти полностью перекачивается в кольцевые структуры, как это происходило в нашем случае, то сами кольцевые структуры с минимальным q_{\perp} могут начинать работать как вторичные накачки для рассеяния с большими углами. По-видимому, возрастание радиуса колец с увеличением интенсивности накачки объясняется нелинейным взаимодействием мод с различными поперечными компонентами волнового вектора. К сожалению, нелинейный анализ взаимодействия мод рассеяния, соответствующих разным областям неустойчивости на рис. 5, с учетом истощения накачки слишком сложен и выходит за рамки данного исследования.

Обычно выделяют так называемый локальный и нелокальный фоторефрактивный отклики кристалла. Локальный отклик связан с формированием объемных решеток, не сдвинутых относительно интерференционной картины излучения, приводящих только к фазовому набегу в рассеянном свете. Нелокальный отклик соответствует решеткам, сдвинутым на половину длины волны относительно интерференционной картины, он приводит к перекачке энергии между модами излучения. Рис. 5 получен для приблизительно равных величин локального и нелокального отклика кристалла, при этом порог конической неустойчивости $\eta LI_p \approx 4.5$. Однако известно, что в кристаллах SPS преобладает диффузионный механизм фоторефракции, приводящий к нелокальному отклику. Локальный отклик в этих кристаллах, связанный с фотогальваническим эффектом, на несколько порядков слабее [32]. Численный анализ показывает, что порог неустойчивости при этом будет на те же несколько порядков выше, т.е. следует ожидать его на уровне 10^3 – 10^5 .

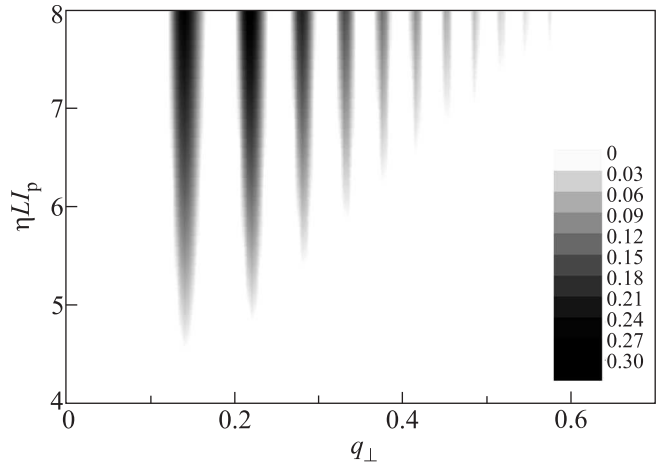


Рис. 5. Порог конической неустойчивости и величина инкремента нарастания решеток с поперечным волновым вектором q_{\perp} , полученные при помощи численного интегрирования, в координатах $(q_{\perp}, \eta LI_p)$ (в условных единицах)

Оценим величину ηLI_p в наших экспериментальных условиях. Параметр η , характеризующий фоторефрактивный отклик диффузионной природы, можно записать в виде $\eta = renD/(\lambda^2 \sigma I_s)$ [33], где r – компонента электрооптического тензора, λ – длина волны накачки, n – концентрация носителей заряда, D – их коэффициент диффузии, σ – проводимость кристалла, а I_s – параметр, описывающий эффекты насыщения при фотовозбуждении носителей. Учитывая, что коэффициент диффузии $D \sim kT\mu/e$ и проводимость $\sigma \sim en\mu$, где μ – подвижность носителей, получаем $\eta LI_p \sim (rkT/(\lambda e))(L/\lambda)(I_p/I_s)$. Электрооптический коэффициент в кристаллах SPS имеет порядок $r \sim 100$ пм/В, а оценка для параметра насыщения $I_s \sim 7$ Вт/см² [34]. Отсюда для наших экспериментальных условий при пороговом значении интенсивности $I_p = 180$ мВт/см² получаем $\eta LI_p \sim 3 \cdot 10^4$, что качественно соответствует нашим теоретическим оценкам.

Аналогично можно оценить электростатическое поле разделенных зарядов $\mathcal{E} \sim (kT/(\lambda e))(I_p/I_s) \approx 5 \cdot 10^9$ В/см. Видно, что оно на много порядков больше коэрцитивного поля в SPS. Это означает, что обнаруженная нами коническая неустойчивость в кристаллах SPS, приводящая к записи объемных дифракционных решеток с поперечной компонентой волнового вектора, зависящей от интенсивности накачки, должна сопровождаться процессами переполаризации кристалла и формирования структур сегнетоэлектрических доменов. Изучение образующихся доменных структур и возможности их перестрой-

ки путем простого изменения мощности оптической накачки может стать чрезвычайно интересным продолжением данной работы.

Авторы выражают благодарность Ю.М.Высочанскому за предоставление образцов, А.М.Бурякову и В.Р.Билык за помощь в проведении эксперимента и А.А.Ежову за полезные консультации. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (грант 14.Z50.31.0034) и грантов РФФИ 14-22-02091, 16-02-00258, госзадание 3.7500.2017/П220.

1. W. Phillips, J. J. Amodei, and D. L. Staebler, *RCA Rev.* **33**, 94 (1972).
2. I. F. Канаев, V. K. Malinovsky, and B. I. Sturman, *Opt. Comm.* **34**, 95 (1980).
3. В. В. Воронов, И. Р. Дорош, Ю. С. Кузьминов, Н. В. Ткаченко, *Квантовая электроника* **7**, 2313 (1980).
4. P. A. Augustov, M. Reinfelde, and K. K. Shvarts, *Appl. Phys. A* **29**, 169 (1982).
5. Э. М. Авакян, К. Т. Белабаев, С. Г. Одулов, *ФТТ* **25**, 3274 (1983).
6. F. Guibaly and L. Yong, *Ferroelectrics* **46**, 201 (1983).
7. S. Odoulov, K. Belabaev, and I. Kiseleva, *Opt. Lett.* **10**, 31 (1985).
8. И. Н. Киселева, В. В. Обуховский, С. Г. Одулов, *ФТТ* **28**, 2975 (1986).
9. D. A. Temple and C. Warde, *JOSA B* **3**, 337 (1986).
10. J. Pender and L. Hesselink, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 1361 (1990).
11. В. В. Обуховский, А. В. Стоянов, *Квантовая электроника* **12**, 563 (1985).
12. S.-M. Liu, G.-Y. Zhang, J.-L. Wang, X.-Y. Ma, and Y.-F. Fu, *Optics Comm.* **70**, 185 (1989).
13. T. Honda, *Optics Lett.* **18**, 598 (1993).
14. N. V. Kukhtarev, T. V. Kukhtareva, H. J. Caulfield, P. P. Banerjee, H.-L. Yu, and L. Hesselink, *Opt. Eng.* **34**, 2261 (1995).
15. T. Honda and H. Matsumoto, *Opt. Lett.* **20**, 1755 (1995).
16. Б. И. Стурман, А. И. Черных, *ЖЭТФ* **111**, 1611 (1997).
17. П. М. Лушников, *ЖЭТФ* **113**, 1122 (1998).
18. И. Ф. Канаев, В. К. Малиновский, Б. И. Стурман, *ЖЭТФ* **74**, 1599 (1978).
19. S. G. Odoulov, A. N. Shumelyuk, U. Hellwig, R. A. Rupp, A. A. Grabar, and I. M. Stoyka, *JOSA B* **13**, 2352 (1996).
20. R. V. Gamernyk, Yu. P. Gnatenko, P. M. Bukivsiy, P. A. Skubenko, and V. Yu. Slivka, *J. Phys.: Cond. Mat.* **18**, 5323 (2006).
21. R. M. Yevych and Yu. M. Vysochanskii, *Cond. Mat. Phys.* **11**, 417 (2008).
22. C. D. Carpentier and R. Nitsche, *Materials Research Bulletin* **9**, 1097 (1974).
23. M. I. Gurzan, A. P. Buturlakin, V. S. Gerasimenko, N. F. Korde, and V. Y. Slivka, *Sov. Phys. Solid State* **19**, 1794 (1977).
24. A. Anema, A. Grabar, and T. Rasing, *Ferroelectrics* **183**, 181 (1996).
25. A. A. Grabar, I. V. Kedyk, M. I. Gurzan, I. M. Stoika, A. A. Molnar, AND Y. M. Vysochanskii, *Opt. Comm.* **188**, 187 (2001).
26. D. Haertle, G. Caimi, A. Haldi, G. Montemezzani, P. Gunter, A. A. Grabar, I. M. Stoika, and Y. M. Vysochanskii, *Opt. Comm.* **215**, 333 (2003).
27. M. Imlau, V. Dieckmann, H. Badorreck, and A. Shumelyuk, *Opt. Materials Express* **1**, 953 (2011).
28. Yu. Vysochanskii, K. Glukhov, K. Fedyo, and R. Yevych, *Ferroelectrics* **414**, 30 (2011).
29. К. А. Гришунин, К. А. Брехов, О. В. Самотохин, *Российский технологический журнал*, **2(7)**, 134 (2015).
30. D. Haertle, A. Guarino, J. Hajfler, G. Montemezzani, and P. Günter, *Opt. Express* **13**, 2047 (2005).
31. П. А. Прудковский, *Квантовая Электроника* **41**, 30 (2011).
32. Y. W. Cho, S. K. Choi, and Yu. M. Vysochanskii, *J. Mater. Res.* **16**, 3317 (2001).
33. В. В. Обуховский, А. В. Стоянов, *Квантовая электроника* **12**, 563 (1985).
34. A. A. Grabar, M. Jazbinsek, A. N. Shumelyuk, Y. M. Vysochanskii, G. Montemezzani, and P. Gunter, in: *Photorefractive materials and their applications 2*, Ch.10, ed. by P. Gunter, J.-P. Huignard, Springer Series in Optical Sciences, Berlin (2007), v. 114, p. 640.