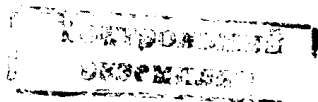


01.04.05

В 152



На правах рукописи

ВАЛЕЕВ Артур Ильсявович

**УДВОЕНИЕ ЧАСТОТЫ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ
НА РЕШЕТКАХ КВАДРАТИЧНОЙ
ПОЛЯРИЗУЕМОСТИ
В СВИНЦОВОСОДЕРЖАЩИХ СТЕКЛАХ**

Специальность 01.04.05 – "Оптика"

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Челябинск 2001

Работа выполнена в Вузовско-академическом отделе нелинейной оптики Института электрофизики УрО РАН и Южно-Уральского государственного университета.

Научные руководители: д.ф.-м.н. Н.Д.Кундикова,
к.ф.-м.н. В.М. Чуриков.

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук
Станислав Михайлович Шандаров:
доктор химических наук
Вадим Николаевич Быков.

Ведущая организация: Институт проблем механики РАН,
г.Москва.

Защита состоится 27 ноября 2001 г. в 13⁰⁰ часов на заседании диссертационного совета Д.004.024.01 при Институте электрофизики УрО РАН по адресу: 620016, г. Екатеринбург, ул. Амундсена, 106.


С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института электрофизики УрО РАН.

Автореферат разослан " ____ " октября 2001г.

Ученый секретарь

диссертационного совета,

доктор физико-математических наук

 Н.Н. Сюткин

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

В 1986 году Остерберг и Маргулис¹ наблюдали эффективную генерацию второй гармоники в германосиликатном волокне. Это открытие было неожиданным, поскольку квадратичная восприимчивость стекла равна нулю и не выполнено условие синхронизма. Позднее было показано, что взаимно когерентные световые поля с частотами ω и 2ω записывают в стекле решетку (голограмму) квадратичной восприимчивости $\chi^{(2)}$. Согласно наиболее распространенной гипотезе $\chi^{(2)}$ -решетка представляет собой пространственно-периодическое электростатическое поле с периодом, удовлетворяющим условию синхронизма для генерации второй гармоники. Несмотря на многочисленные исследования до сих пор не существует единой точки зрения на механизм формирования такого поля. В 1990 году фотоиндуцированная генерация второй гармоники была обнаружена в свинцовосиликатном стекле². Эффективность преобразования излучения во вторую гармонику в этом стекле была на порядок выше, чем в германосиликатных заготовках для волокна, поэтому это открытие вызвало повышенный интерес исследователей. Высокую эффективность генерации второй гармоники в свинцовосиликатных стеклах связывали с немостиковым кислородом, образующимся в присутствии ионов Pb^{2+} . Энергия немостиковой кислородной связи на 1.5 эВ ниже, чем энергия мостиковой кислородной связи, так что он мог

¹Osterberg U. and Margulis W., Experimental studies on efficient frequency doubling in glass optical fibers // Optics Letters, 1987, v.12, n.1, p.57-59.

²Зельдович Б.Я., Капицкий Ю.Е., Чуриков В.М., Наведенные $\chi^{(2)}$ решетки в объемных стеклах // Письма в ЖЭТФ, 1991, т.17, в.3, с. 77-79.

бы служить донором электронов. Одновременная засветка стекла излучением основной частоты и когерентной второй гармоники приводит к полярно-асимметричной ионизации донорных центров с последующим захватом вылетевших электронов ловушками. В альтернативной модели был рассмотрен механизм, основанный на пространственно-периодической ориентации связей $\text{Si-O-Pb}^{2+}\text{-O-Si}$ под действием двухчастотного светового поля. Было найдено, что оптимальная для наведенной ВГ концентрация оксида свинца в силикатном стекле составляет ~ 20 мол. %. Снижение эффективности генерации второй гармоники при больших концентрациях свинца объясняли увеличением фотопроводимости стекла под действием излучения третьей гармоники, обусловленной ростом кубической нелинейности. Поскольку наведенная генерация второй гармоники первоначально наблюдалась в волокнах и стеклах на силикатной основе, долгое время оставалось неясным, является ли это явление исключительным свойством силикатного стекла. Поэтому исследование фотоиндуцированной генерации второй гармоники в стеклах на основе других стеклообразователей представляет научный интерес.

Цель данной работы заключается в изучении новых свойств и возможностей применения голограмм квадратичной поляризуемости и поиске новых материалов для фотоиндуцированной генерации второй гармоники.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие задачи:

- 1) Разработать новый способ регистрации голограмм квадратичной поляризуемости в объемных материалах, при котором ре-

гистрация и запись происходят одновременно.

- 2) Исследовать возможность генерации фотоиндуцированной второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах и ее особенности.
- 3) Исследовать влияние легирования ионами церия на фотоиндуцированную генерацию второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах.

Научная новизна работы заключается в следующем.

1. Предложен и реализован принципиально новый метод считывания $\chi^{(2)}$ -голограмм, одновременный с записью.
2. Впервые обнаружена и исследована эффективная фотоиндуцированная генерация второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах.
3. Впервые исследовано влияние примесей церия на время жизни наведенной квадратичной восприимчивости в свинцовосодержащих стеклах.
4. На основе проведенных исследований предложен состав стекла, в котором зарегистрирована максимальная эффективность преобразования во вторую гармонику (по данным, имеющимся в литературе).

Научные положения, которые выносятся на защиту, можно сформулировать следующим образом.

1. Возможна одновременная запись и считывание голограмм квадратичной поляризуемости одним и тем же пучком.

2. Эффективная фотоиндуцированная генерация второй гармоники существует в свинцовофосфатных стеклах.
3. Увеличение концентрации свинца в фосфатном стекле приводит к уменьшению его оптической стойкости, увеличению скорости свободного распада $\chi^{(2)}$ -голограмм в нем и увеличению эффективности преобразования излучения во вторую гармонику.
4. Введение оксида церия в свинцовофосфатные стекла приводит к увеличению их оптической стойкости, увеличению времени жизни наведенной квадратичной нелинейности и увеличению эффективности преобразования излучения во вторую гармонику.
5. Стирание $\chi^{(2)}$ -голограмм в свинцовофосфатных стеклах с оксидом церия происходит трехфотонно.
6. Возможна запись $\chi^{(2)}$ -голограммы одиночным импульсом длительностью 30 наносекунд.
7. В свинцовофосфатном стекле предложенного состава эффективность преобразования во вторую гармонику превышает эффективность преобразования в других материалах.

Практическая ценность работы

Явление фотоиндуцированной генерации второй гармоники имеет потенциальные возможности практического применения для создания относительно дешевых эффективных удвоителей излучения, для создания накопителей информации и для исследования свойств оптических материалов.

С помощью предложенного в работе метода одновременных записи и считывания $\chi^{(2)}$ -голограмм авторами³ были выполнены количественные измерения динамики $\chi^{(2)}$ -нелинейности в пленках ПММА с азокрасителем DR1. В результате был установлен микроскопический механизм фотоориентации молекул красителя.

Апробация работы

Материалы диссертации докладывались на международных конференциях "Прикладная Оптика 96", "Прикладная Оптика 98", XVI International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO'98), "Оптика 99", PSROC Annual Meeting, на Конференции Молодых Ученых института электрофизики УрО РАН в 1995 и 1997 году, на семинарах отдела нелинейной оптики.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения. Она содержит 24 рисунка, одну таблицу и список цитируемой литературы из 116 наименований. Полный объем диссертации 94 страницы. Выводы формулируются в конце каждой главы.

Содержание диссертации

Введение содержит обоснование актуальности темы диссертационной работы, формулировку цели работы, защищаемых положений, научной новизны и практической ценности полученных результатов.

³Churikov V.M., Hung M.F., Hsu C.C., Real-time monitoring of all-optical poling of azo-dye polymer thin film // Optics Letters, 2000, 25, p. 960-962.

В первой главе дан обзор работ, касающихся темы данной диссертации.

В параграфе 1.1 описана фотоиндуцированная генерация второй гармоники как явление и приведены ее основные особенности.

В параграфе 1.2 на основе литературных данных рассмотрены свойства тензора квадратичной нелинейной восприимчивости, наводимого в centrosymmetric средах под действием излучения с полярной асимметрией. Предложено использовать неколлинеарность поляризаций записывающего и считанного излучений второй гармоники для их разделения в процессе записи $\chi^{(2)}$ - голограммы.

В параграфе 1.3 дан обзор свойств centrosymmetric стеклообразных материалов, в которых наблюдалась фотоиндуцированная генерация второй гармоники. Описаны особенности стекол на силикатной основе. Предложено использование свинцово-фосфатных стекол.

В параграфе 1.4 рассматривается влияние ионов редкоземельных элементов, в частности церия, на фотоиндуцированную генерацию второй гармоники в стеклах.

Вторая глава посвящена одновременной записи и считыванию решетки квадратичной поляризуемости пучками излучения с неколлинеарными поляризациями.

В параграфе 2.1 на основе тензорных свойств голограмм квадратичной поляризуемости показывается принципиальная возможность одновременной записи и считывания голограммы одним и тем же опорным пучком излучения при использовании пучка записывающей второй гармоники с линейной поляризацией, неколлинеарной.

линейной поляризации опорного пучка.

В параграфе 2.2 дано описание экспериментальной установки, использовавшейся для одновременной записи и считывания голограммы. В качестве источника излучения использовался Nd: АИГ лазер с непрерывной накачкой, активной модуляцией добротности и активной синхронизацией мод. Лазер излучал на длине волны 1064 нм в непрерывном одномодовом режиме. Средняя мощность излучения составляла 0,5 Вт.

Излучение лазера частично удваивало частоту при прохождении через кристалл КТР. Поляризационная система, состоящая из трех слюдяных пластин, преобразовывала поляризации излучений на основной частоте и на его второй гармонике в линейные под углом в 45° друг к другу. Излучения фокусировались в образец стекла ЖС4 микрообъективом. Выходной анализатор (призма Глана) использовался для выделения сигнала второй гармоники, восстановленного записываемой голограммой. Сигнал регистрировался фотоэлектронным умножителем ФЭУ-127В.

В параграфе 2.3 приведены графики роста сигнала второй гармоники с голограммы и дано объяснение первоначального уменьшения сигнала второй гармоники двулучепреломлением, наведенным в стекле при прохождении мощного инфракрасного излучения. Продемонстрирована возможность компенсации наведенного в стекле двулучепреломления вносимым внешним двулучепреломляющим элементом.

В параграфе 2.4 приведены основные результаты главы 2.

В третьей главе рассматриваются особенности

фотоиндуцированной генерации второй гармоники, обнаруженной в свинцовофосфатных стеклах.

В параграфе 3.1 описана экспериментальная установка, использовавшаяся для исследования свойств фотоиндуцированной генерации второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах. В качестве источника излучения использовался Nd: АИГ импульсный лазер с пассивной модуляцией добротности. Лазер генерировал на длине волны 1064 нм импульсы длительностью 30 нс с частотой следования 10 Гц. Излучение лазера частично удваивалось при прохождении через кристалл КТР. Для записи $\chi^{(2)}$ -голограммы основное излучение и его вторая гармоника фокусировались в образец стекла. Для считывания голограммы вторая гармоника отсекалась фильтром КС 10, при прохождении основного излучения через голограмму генерировалась вторая гармоника. Энергия импульса второй гармоники измерялась с помощью ФЭУ 127В и набора прокалиброванных светофильтров. Чувствительность ФЭУ позволяла регистрировать импульсы ВГ с энергией вплоть до 10^{-16} Дж.

В параграфе 3.2 приведены основные результаты, полученные при исследовании фотоиндуцированной генерации второй гармоники в бинарных свинцовофосфатных стеклах. Измерена зависимость оптического пробоя в стекле от концентрации оксида свинца. Показано, что порог оптического пробоя в фосфатных стеклах значительно выше, чем в силикатных, и падает с ростом концентрации оксида свинца.

Измерено время темнового (свободного) распада $\chi^{(2)}$ - голограммы в фосфатных стеклах в зависимости от концентрации оксида свинца. Показано, что скорость распада увеличивается с ростом

концентрации оксида свинца. График зависимости энергии второй гармоники от времени распада имеет существенно неэкспоненциальный вид. Измерены эффективности генерации второй гармоники в этих стеклах при равной мощности записывающих излучений. В отличие от свинцовосиликатных стекол, где наибольшая эффективность генерации наблюдается в стеклах с 20 мол. % оксида свинца, в фосфатных стеклах наибольшие эффективности преобразования во вторую гармонику показали стекла с максимальной концентрацией оксида свинца. В этих стеклах быстрее происходили запись $\chi^{(2)}$ -голограммы и ее стирание при считывании.

В параграфе 3.3 приведены основные результаты третьей главы.

В четвертой главе рассмотрены особенности фотоиндуцированной генерации второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах с добавкой оксида церия.

В параграфе 4.1 приведены основные результаты, полученные при исследовании фотоиндуцированной генерации второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах, легированных оксидом церия. Показано, что добавка большого количества оксида церия (1.5 мол.%) повышает оптическую стойкость фосфатного стекла к пробое. В стеклах с большей концентрацией оксида церия запись $\chi^{(2)}$ -голограммы происходит медленнее, но при этом эффективность генерации второй гармоники выходит на более высокий уровень. Медленнее в них происходит и стирание $\chi^{(2)}$ -голограммы при ее считывании. Так же легирование оксидом церия замедляет скорость свободного (темнового) распада $\chi^{(2)}$ -голограммы. Если в базовом стекле, не содержащем церия, распад при комнатной тем-

пературе происходит с характерным временем около 30 минут, то в стекле с добавкой 1.5 мол. % оксида церия существенный распад происходит только за время порядка нескольких недель.

Измерена зависимость скорости стирания $\chi^{(2)}$ -голограммы считывающим излучением от мощности излучения. Полученная зависимость обратного времени распада голограммы от куба мощности излучения имела линейный характер, что свидетельствует о трехфотонном процессе стирания голограммы. В то время как в германосиликатных стеклах стирание происходит четырехфотонно, в свинцовосиликатных стеклах — двухфотонно, а в свинцовогерманатных стеклах с церием зависимость скорости стирания от мощности имела степень, близкую к 1,5. Неэкспоненциальность стирания $\chi^{(2)}$ -голограммы считывающим излучением, возможно, связана с тем, что из-за сильной зависимости скорости стирания от плотности мощности излучения стирание голограммы в областях фокальной перетяжки с большей плотностью мощности происходит быстрее.

Эффективность генерации второй гармоники в фосфатном стекле с 1.5 мол. % оксида церия оказалась достаточно высока, чтобы регистрировать сигнал второй гармоники с голограммы, записанной одиночным импульсом излучения. При этом $\chi^{(2)}$ -голограмму, записанную одиночным импульсом, можно считать многократно без ее полного стирания.

Исследование серий стекол с различной концентрацией оксидов свинца и церия показало, что эффективность генерации второй гармоники растет с ростом концентрации свинца и церия и что скорость роста сигнала второй гармоники увеличивается с кон-

центрацией свинца, поэтому для получения максимального коэффициента преобразования во вторую гармонику в ГОИ было синтезировано стекло с 30 мол.% PbO и 5.5 мол.% CeO₂. Сравнивалась эффективность генерации второй гармоники в этом стекле и в подробно исследованном ранее свинцовосиликатном стекле с церием ЖС 4 при равных мощностях запирывающих излучений. Эффективность генерации второй гармоники в синтезированном стекле была выше примерно в полтора раза. Также выше в нем оказалась стойкость к оптическому пробую.

В параграфе 4.2 описаны особенности фотоиндуцированной генерации второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах, содержащих ионы ниобия и неодима. Эффективная фотоиндуцированная генерация второй гармоники обнаружена в промышленно используемом неодимовом фосфатном лазерном стекле КГСС.

В параграфе 4.3 дается интерпретация результатов, приведенных в предыдущих разделах, в рамках фотогальванической модели. Увеличение эффективности генерации второй гармоники в церийсодержащих стеклах объясняется появлением новых центров — источников электронов и их ловушек, которыми являются восстановленные и окисленные ионы церия Ce³⁺ и Ce⁴⁺.

В параграфе 4.4 перечислены основные результаты четвертой главы.

В заключении сформулированы основные результаты, полученные в диссертации.

1. Предложен и реализован принципиально новый метод считывания $\chi^{(2)}$ -голограмм, одновременного с записью. При этом

считывание голограммы производится тем же пучком, что и ее запись, что устраняет ее стирание при считывании. Новый метод считывания может найти применение для регистрации короткоживущих динамических $\chi^{(2)}$ -голограмм.

2. Обнаружена эффективная фотоиндуцированная генерация второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах. Показано, что с ростом концентрации оксида свинца в них увеличивается скорость свободного распада $\chi^{(2)}$ -голограмм, увеличивается эффективность генерации второй гармоники, увеличиваются скорости записи и стирания $\chi^{(2)}$ -голограмм.
3. Исследовано влияние примеси церия на генерацию второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах. Показано, что в стеклах, легированных оксидом церия, уменьшается скорость темнового распада наведенной нелинейности, увеличивается эффективность генерации второй гармоники, повышается порог оптического пробоя. Продемонстрировано, что стирание $\chi^{(2)}$ -голограмм в них происходит трехфотонно.
4. Продемонстрирована возможность записи $\chi^{(2)}$ -голограммы одиночным импульсом длительностью 30 наносекунд. Это свойство может найти применение в устройствах для хранения информации.
5. На основе полученных зависимостей предсказана повышенная эффективность генерации второй гармоники в фосфатном стекле с максимальной концентрацией свинца и церия. Предложенное стекло было синтезировано и показало рекордную эффективность генерации.

Основные результаты диссертации изложены в следующих работах:

1. Валеев А.И., Чуриков В.М. Считывание $\chi^{(2)}$ - голограмм, записываемых пучками с неколлинеарными поляризациями: Тезисы Международной конференции "Прикладная Оптика'96". - СПб, 1996. - С. 248.
2. А.И. Валеев, В.М. Чуриков. Одновременные запись и считывание $\chi^{(2)}$ - голограмм в стеклах // Письма в ЖТФ. - 1997. - Т. 23. - Вып. 1. - С. 46-51.
3. Churikov V.M., Valeev A.I., Schavelev O.S., Some features of growth and decay of second order polarizability gratings in lead glasses // XVI International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (Moscow, June 29 - July 3, 1998), Technical Digest, paper TuT34, p. 91.
4. Валеев А.И., Щавелев О.С., Чуриков В.М. Свинцово-фосфатные стекла как перспективные материалы для генерации гармоник лазерного излучения: Тезисы Международной конференции "Прикладная Оптика'98". - СПб, 1998. - С. 19-20.
5. Валеев А.И., Чуриков В.М., Щавелев К.О., Щавелев О.С. Концентрационные зависимости свойств фотоиндуцированной генерации второй гармоники в свинцовофосфатных стеклах // Известия Челябинского научного центра. - 1999. - Вып. 3(5). - С. 7-10.
6. Валеев А.И., Чуриков В.М., Щавелев К.О., Щавелев О.С. Исследование новых материалов для фотоиндуцированной

- генерации второй гармоники лазерного излучения // The third International Symposium "Application of the Conversion Research Results for International Cooperation" (SIBCONVERS'99). Proceedings. - Tomsk: Tomsk State University of Control Systems and Radioelectronics. Russia. Tomsk, May 18-20, 1999, v.1, p. 28-30.
7. Валеев А.И., Щавелев К.О., Щавелев О.С., Чуриков В.М. Свинцово-фосфатные стекла как перспективные материалы для генерации гармоник лазерного излучения: Тезисы Международной конференции молодых ученых "Оптика'99". –СПб, 1999.– С. 68.
 8. Churikov V.M., Valeyev A.I., Schavelev K.O., Schavelev O.S., New frequency doubling glasses synthesized on the base of alkali-earth metaphosphates // Summaries of 2000 PSROC Annual Meeting (January 31-February 1, 2000, Tainan, Taiwan), p.54.
 9. Валеев А.И., Чуриков В.М., Щавелев К.О., Щавелев О.С. Генерация второй гармоники в свинцовосодержащих стеклах на основе метафосфатов щелочноземельных элементов // Физика и химия стекла.–2000.– Т. 26.–Вып. 5.–С. 586-592.
 10. Валеев А.И., Чуриков В.М., Щавелев К.О., Щавелев О.С. Исследование генерации второй гармоники в стеклах на основе системы $Pb(PO_3)_2 - Ba(PO_3)_2$, активированных церием // Физика и химия стекла.–2000.– Т. 26.–Вып. 5.– С. 593-598.
 11. V.M.Churikov, A.I.Valeyev, K.O.Schavelev, O.S.Schavelev, Observation of efficient second harmonic generation in lead-phosphate glasses // Optical Materials, 2000, v.14(1), p. 69-72.