

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Самоорганизация возбуждений в германосиликатных волоконных световодах и ее роль в генерации второй гармоники

Б.П. Антонюк, В.Б. Антонюк

На основе экспериментов по комбинационному и гиперкомбинационному рассеянию, а также прямых измерений поглощения в области зеленого света выявлен новый тип возбуждений в силикатных волоконных световодах, возникающий при добавлении примесей GeO_2 , — экситоны с переносом заряда. Показано, что их самоорганизация (ориентационное упорядочение дипольных моментов) приводит к положительной обратной связи в отклике на статическое электрическое поле. В результате возникает поле 10^5 В/см, нарушающее симметрию инверсии исходно центросимметричной среды и разрешающее генерацию второй гармоники, которая существует лишь на стадии приготовления среды и самовыключается при переходе к стационарному состоянию.

PACS numbers: 42.81 Qb, 61.43 Fs, 72.20 Jv

Содержание

1. Введение (61).
 2. Эксперимент: новый тип возбуждений в германосиликатных волоконных световодах (63).
 3. Положительная обратная связь в отклике на статическое электрическое поле (66).
3.1. Отклик двухуровневой системы ЭПЗ. 3.2. Отклик системы ЭПЗ с далекими переносами электрона. 3.3. Отклик системы локализованных электронов и дырок.
 4. Распространение волн в германосиликатном волоконном световоде (71).
4.1. Распространение слабой волны второй гармоники.
4.2. Высокоэффективная генерация второй гармоники.
 5. Сравнение теории с экспериментом и результатами других моделей (74).
 6. Заключение (78).
- Список литературы (78).

В глубинах хаоса кроется чудесное.
Лао Цзы

1. Введение

Явления самоорганизации в открытых физических системах чрезвычайно разнообразны и красивы. Остановимся вкратце на некоторых примерах таких явлений.

Б.П. Антонюк, В.Б. Антонюк. Институт спектроскопии РАН, 142092 Троицк, Московская обл., Российская Федерация
Тел. (095) 334-02-38. Факс (095) 334-08-86
E-mail: antonyuk@isan.troitsk.ru; vadimant@isan.troitsk.ru

Статья поступила 20 сентября 2000 г.,
после доработки 11 октября 2000 г.

При смешивании четырех или пяти химических соединений (например, бромата натрия, малоновой кислоты, серной кислоты и ферроина) в надлежащем соотношении концентраций и температур система спонтанно самоорганизуется в пространственно-временные диссипативные структуры макроскопических размеров. В результате химической реакции образуется более 20 промежуточных продуктов. Возникающие химические волны обычно наблюдают по изменению окраски катализатора. В двумерном случае картина бывает похожа на упорядоченные ячейки (пчелиные соты в разрезе) или на группу концентрических окружностей. Данная колебательная система называется системой Жаботинского [1].

Эффект, носящий название конвекции Рэлея – Бенара, является примером самоорганизации в гидродинамике [2]. Слой изучаемой жидкости (силиконового масла) закладывается между двумя полированными пластинами с высокой теплопроводностью. Одна из пластин нагревается, и если число Рэлея Ra (пропорциональное приложенной к слою разности температур в вертикальном направлении) превышает некоторое критическое значение Ra_c , в слое жидкости образуется конвективная структура из прямых цилиндров, оси которых перпендикулярны наибольшей стороне основания.

Возникающая периодическая структура имеет вполне определенную длину волны, близкую около порога Ra_c к удвоенной толщине слоя. В модели явления за параметр порядка принимают амплитуду скорости конвекции $V > 0$ при $Ra > Ra_c$. Если же число Рэлея меньше критического ($Ra < Ra_c$), то параметр порядка становится равным нулю и упорядоченность конвективного движения исчезает (фазовый переход второго рода).

Нельзя не упомянуть в этом ряду неустойчивость Тьюринга. Рассматривая в своей модели систему диффузионных уравнений для двух веществ с нелинейной

правой частью [3], Тьюринг пришел к выводу, что нелинейное взаимодействие делает стационарное решение системы неустойчивым, что приводит к возникновению полей концентрации веществ.

Оптическим аналогом неустойчивости Тьюринга можно считать оптический морфогенез. Волновое уравнение для электромагнитного поля в резонаторе в сочетании с керровской нелинейностью дает решение в виде устойчивой картины симметрично чередующихся максимумов и минимумов интенсивности. Эта картина наблюдается экспериментально [4] и не имеет ничего общего с интерференционной, так как имеет другой пространственный масштаб.

Анализируя различные примеры самоорганизации, Пригожин сформулировал необходимые условия для ее реализации (за эти исследования он был удостоен Нобелевской премии по физике):

- система должна быть открытой;
- система должна быть существенно нелинейной;
- эффект самоорганизации пороговый, т.е. параметр порядка отличен от нуля при значениях определенных физических величин больше критических.

В 1986 г. шведские физики Остерберг и Маргулис наблюдали интригующий эффект: самопроизвольную, достаточно эффективную (около 10 %) генерацию второй гармоники в волоконном световоде с примесью GeO_2 [5]. Слабая генерация наблюдалась и ранее [6]; позднее было показано [7], что интенсивность этой генерации пропорциональна площади поверхности волоконного световода. Из-за нарушения симметрии инверсии в приповерхностном слое ничто не запрещает генерацию, и поэтому слабый эффект не вызывает удивления. Напротив, в объеме волокна среда centrosymmetricна, так что тензор нелинейной поляризуемости $\chi^{(2)}$ тождественно равен нулю, и процесс удвоения частоты невозможен. По этой причине сообщение об эффективной генерации вызвало большой интерес к проблеме, был предложен ряд теорий.

В первой из таких теорий [8] обращалось внимание на то, что вследствие выпрямления полей первой (E_1) и второй (E_2) гармоник возникает статическая поляризация $P_0 = \chi^{(3)} E_1 E_2^*$ и соответствующее ей фазовосогласованное статическое электрическое поле $E_0 = -4\pi P_0$. Далее предполагалось, что поле E_0 ориентирует дефекты и, таким образом, возникает запись пространственного распределения поля. Оказалось, однако, что из-за малости восприимчивости $\chi^{(3)}$ поле E_0 слишком слабо. Самые оптимистические оценки амплитуды дают $E_0 \approx 1$ В/см, что, конечно, не позволяет ориентировать дефекты в конденсированной среде.

В последующих теориях [9–12] предлагалась идея асимметричной фотоионизации дефектов под действием первой и второй гармоник. В этих работах использовались свободные состояния электронов и дырок и многофотонное возбуждение таких состояний, описывались некоторые черты явления, однако ряд важных вопросов оставался без ответа.

В том же 1986 г. Б.П. Антонюком была предложена идея о самоорганизации возбуждений, имеющих дипольный момент, под действием интенсивного лазерного поля [13]. Было показано, что ориентационное упорядочение возбуждений может привести к тому, что в среде возникает сильное статическое электрическое поле, способное нарушить симметрию инверсии. Такая

среда может эффективно удваивать частоту, и это обстоятельство позволяет привлечь модель самоорганизации [13] для объяснения явления эффективной генерации второй гармоники [5].

Оптические явления, наблюдавшиеся в волоконном световоде [5], описываются уравнениями Максвелла или вытекающими из них волновыми уравнениями, которые, однако, должны быть дополнены материальными соотношениями, определяющими отклик среды. Для этого нужно выяснить, какие возбуждения вовлечены в процесс и описать их кинетику в существующих в среде световых полях.

В эксперименте [5] использовалась фундаментальная частота Nd:YAG-лазера ($\lambda = 1064$ нм), удвоение которой давало зеленый свет ($\lambda = 532$ нм). Нами были проведены эксперименты по комбинационному и гиперкомбинационному рассеянию света в силикатных волоконных световодах с различными концентрациями GeO_2 (именно в таких световодах наблюдалось явление). Спектры гиперкомбинационного рассеяния были получены при возбуждении линией Nd:YAG-лазера $\lambda = 1064$ нм, спектры комбинационного рассеяния возбуждались его второй гармоникой ($\lambda = 532$ нм), а также линиями Ar^+ -лазера $\lambda = 514,5$ нм и $\lambda = 488$ нм.

Сравнение полученных спектров с соответствующими спектрами чистого силикатного стекла позволило обнаружить новый тип возбуждений, возникающих в примесном световоде и полностью отсутствующих в чистом стекле, — экситон с переносом заряда (ЭПЗ). Важно отметить, что эти состояния возбуждаются одним квантом зеленого света.

Концентрационная зависимость полученных спектров показала, что при поглощении кванта электрон из Ge-центра переносится в матрицу или на другой Ge-центр при их высокой концентрации. Обратный переход сопровождается испусканием кванта люминесценции. Соответствующие спектры поглощения и люминесценции ЭПЗ были измерены экспериментально, что стало основой оригинальной модели, описывающей самоорганизацию возбуждений в силикатном волоконном световоде с примесями GeO_2 , приводящую к эффективной генерации второй гармоники. Эти эксперименты изложены в разделе 2.

В разделе 3 показано, что в лазерном световом поле возникает самоорганизация ЭПЗ (ориентационное упорядочение их дипольных моментов), которая приводит к тому, что в ответ на слабое внешнее электрическое поле при соответствующей частоте накачки в системе возникает положительная обратная связь. ЭПЗ возбуждаются так, что их дипольные моменты направлены преимущественно против поля, и возникающая поляризация усиливает слабое внешнее электрическое поле до 10^5 В/см. Такое электрическое поле способно нарушить симметрию инверсии среды и вызвать эффективную генерацию второй гармоники.

В разделах 3.1 и 3.2 рассмотрены простейшая модель возбуждения ЭПЗ с переносом электрона в два состояния (вдоль и против поля) и расширенная модель, которая позволяет исследовать возможные переходы электрона в разных направлениях и на разные расстояния в пространстве. В разделе 3.3 представлена модель независимых электронов и дырок, в которой учитывается неоднородное уширение, взаимодействие различных Ge-центров и возможность дальних переносов

электрона в пространстве. Самоорганизация возникает во всех трех моделях.

В разделе 4 рассмотрено распространение волн первой и второй гармоник в германосиликатном световоде с учетом их взаимодействия с ЭПЗ. Выведены и исследованы системы из четырех нелинейных уравнений для амплитуд и фаз полей второй гармоники и статической поляризации (раздел 4.1) и шести уравнений для амплитуд и фаз полей первой и второй гармоник и статической поляризации (раздел 4.2). Одна система уравнений хорошо описывает случай, когда амплитуда поля второй гармоники значительно меньше первой (а именно это осуществляется в большинстве экспериментов), тогда как другая система позволяет рассматривать случай сравнимых амплитуд и оценивать эффективность преобразования.

В разделе 5 особое внимание уделено сравнению выводов теоретической модели, рассмотренной в разделах 3 и 4, с результатами экспериментов. В частности, показано, что генерация возможна только на стадии приготовления световода и она самовыключается при переходе к стационарному состоянию, несмотря на то что сильное электрическое поле, нарушающее симметрию инверсии, остается. После выключения генерации любая "встряска" системы — изменение фазы или амплитуды поля фундаментальной или второй гармоники, наложение или снятие сильного внешнего электрического поля — приводит к всплеску генерации, которая, однако, после резкого нарастания выключается снова.

Предложена идея высокоэффективного удвоителя частоты на основе силикатного волоконного световода с примесными Ge-центрами. Развитая в разделах 3 и 4 теория открывает возможность чисто оптического полинга (наведения поляризации) стекол. В средах с низкой подвижностью носителей световая волна работает как оптический поршень,двигающий электроны (дырки) против действующей на них в статическом электрическом поле силы, что приводит к его усилению. Этот усилитель статического электрического поля может быть использован для полинга стекол и, в частности, волоконных световодов, что дает возможность производить элементы будущих волоконных приборов.

2. Эксперимент: новый тип возбуждений в германосиликатных волоконных световодах

Оптические волоконные световоды, в том числе и с примесями GeO_2 , поглощают излучение в УФ диапазоне ($\lambda < 350$ нм) и в ИК области фоновых колебаний ($\lambda > 2000$ нм). Долгое время считалось, что эти световоды прозрачны в видимом и ближнем ИК ($\lambda < 2000$ нм) диапазонах [14], поэтому для объяснения возникновения генерации второй гармоники в волоконных световодах в первых теориях [9–12] использовалась идея многофотонного поглощения на основной ($\lambda = 1064$ нм) и удвоенной ($\lambda = 532$ нм) частотах. Свободные электронные и дырочные состояния в силикатных стеклах разделены "щелью" 8–10 эВ, и только поглощение нескольких фотонов может перевести электрон из "валентной" зоны в зону "проводимости".

Недавние эксперименты, однако, показали, что в силикатных стеклах при добавлении GeO_2 возникает новый тип возбуждений, отсутствующий как в чистом стекле, так и в GeO_2 и возбуждаемый одним квантом

зеленого света [15–17]. В экспериментах по комбинационному и гиперкомбинационному рассеянию измерялись спектры в чистом силикатном стекле и соответствующие спектры в силикатном волоконном световоде с примесями GeO_2 .

Спектры гиперкомбинационного рассеяния возбуждались фундаментальной частотой излучения Nd:YAG-лазера ($\lambda = 1064$ нм), спектры комбинационного рассеяния наблюдались при возбуждении второй гармоникой ($\lambda = 532$ нм), а также линиями Ar^+ -лазера $\lambda = 514,5$ нм и $\lambda = 488$ нм. Выходящее из световода излучение фокусировалось на щель спектрометра, позволяющего регистрировать спектр люминесценции в диапазоне до 800 нм (сдвиг в красную сторону $\Delta = 8000 \text{ см}^{-1}$ от возбуждающей линии $\lambda = 488$ нм). Изменение спектральной чувствительности спектрометра корректировалось путем сравнения со спектром банд-лампы с известным распределением интенсивности.

Спектры гиперкомбинационного рассеяния в чистом и примесном стеклах (рис. 1) выглядят практически идентично (изменяется лишь колебательная часть). Это свидетельствует о том, что излучение на фундаментальной частоте ($\lambda = 1064$ нм) не затрагивает в примесном стекле никаких новых энергетических состояний.

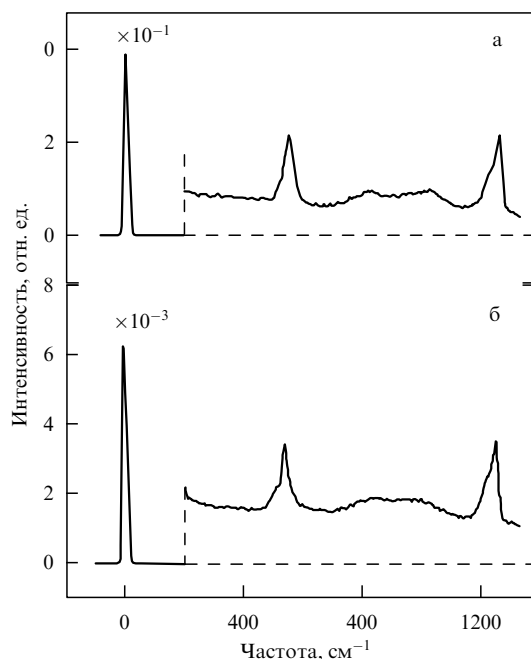


Рис. 1. Спектры гиперкомбинационного рассеяния в чистом стекле (а) и в примесном волоконном световоде (б).

Спектры же комбинационного рассеяния в чистом и примесном стеклах существенно различаются. При возбуждении светом с длиной волны λ_1 , равной 488, 514,5 и 532 нм, в стекле с примесями GeO_2 появляется широкая полоса люминесценции, отсутствующая в чистом стекле (рис. 2). Энергия люминесцентных фотонов составляет около 2 эВ, а ширина полосы — 1 эВ. Вследствие того что силикатное стекло имеет большую "щель", полоса люминесценции может соответствовать только электронным переходам между локализованными состояниями. "Горячая" люминесценция, хотя и могла бы объяснить наблюдаемую ширину, но она на

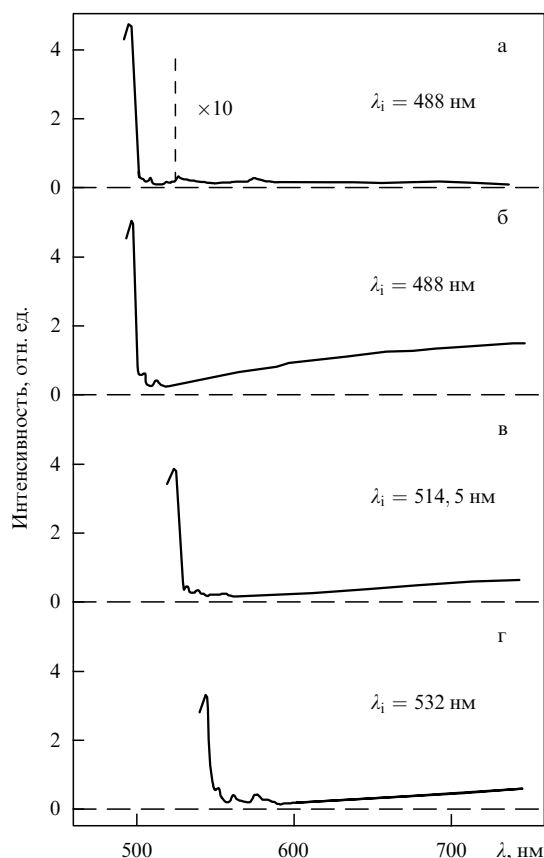


Рис. 2. Спектры комбинационного рассеяния и люминесценции в чистом стекле (а) и в примесном световоде (б–г) для различных значений λ_i .

несколько порядков менее интенсивна в силу быстрой релаксации электрона (пикосекундный масштаб времен).

Электронные переходы между уровнями одной ловушки при монохроматическом возбуждении дали бы дискретные линии люминесценции, которые могли бы быть уширены электрон-фононным взаимодействием до $h\nu_D \sim 10^{-2}$ эВ (где ν_D — дебаевская частота), но никак не до наблюдаемой ширины 1 эВ. По этой причине широкополосная люминесценция была интерпретирована нами как соответствующая переходам между различными потенциальными ямами.

Наблюдаемая полоса люминесценции соответствует большому разбросу начальных значений энергии электрона в хаотичном потенциале матрицы. В соответствующем процессе поглощения электрон переходит из примесного Ge-центра, который служит донором, в локальную энергетическую яму в матрице (рис. 3а); при этом образуется ЭПЗ.

Отметим особо, что для возбуждения ЭПЗ недостаточно фотона фундаментальной частоты ($\lambda = 1064$ нм), однако он возбуждается одним фотоном второй гармоники ($\lambda = 532$ нм). При рекомбинации ЭПЗ возникает широкая полоса люминесценции, наблюдаемая в эксперименте [15].

Более детальная картина переноса электрона была получена при изучении концентрационных зависимостей спектров. Были измерены спектры люминесценции в диапазоне 488–740 нм в силикатных волоконных свето-

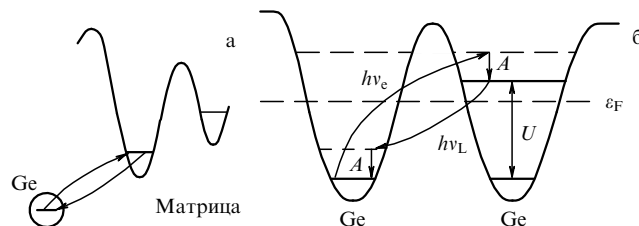


Рис. 3. Перенос электрона с примесного Ge-центра в матрицу (а) и между различными Ge-центрами (б).

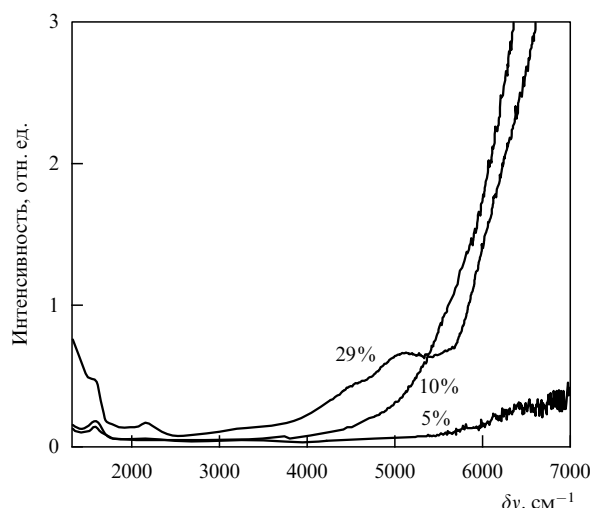


Рис. 4. Спектр люминесценции волоконного световода с молярными концентрациями примесей GeO_2 , равными 5, 10 и 29 % ($\delta\nu$ — сдвиг в красную сторону от линии возбуждающего излучения $\lambda = 488$ нм).

водах с молярными концентрациями примесей GeO_2 , равными 5, 10 и 29 % [16]. Спектры нормировались на интенсивность выходящего из световода излучения.

Полученные результаты показаны на рис. 4 в спектральном диапазоне выше 523 нм. В области ниже 523 нм спектр люминесценции перекрывается интенсивными линиями комбинационного рассеяния. Как видно из рис. 4, добавление GeO_2 приводит к возникновению широкополосной (около 1 эВ) люминесценции, интенсивность которой оказалась пропорциональной интенсивности накачки. Поэтому можно утверждать, что состояния возбуждаются одним квантом зеленого света ($\lambda = 488$ нм, $h\nu_c = 2,54$ эВ).

Интенсивность люминесценции растет примерно линейно с концентрацией GeO_2 в области $\delta\nu < 5500$ см^{-1} (667 нм), что свидетельствует о независимости центров, участвующих в свечении, которое естественно связать с переходами электрона из Ge-центра в матрицу (поглощение) и обратно (рекомбинация с излучением кванта люминесценции).

Сравнение спектров для малой (5 %) и больших (10 и 29 %) концентраций обнаруживает более быстрый, чем линейный, рост интенсивности люминесценции с концентрацией в области $\delta\nu > 5500$ см^{-1} , что свидетельствует о взаимодействии центров, дающих излучение. Естественно связать это излучение с переходами между Ge-центрами. При возбуждении электрон переходит с одного Ge-центра на другой, после релаксации со стоко-

вым сдвигом энергии A рекомбинирует, затем следует вторая релаксация (рис. 36). Кулоновское взаимодействие электронов на одном Ge-центре U дает основной вклад в энергию возбуждения. В основном состоянии на каждом Ge-центре находится по одному электрону: в возбужденном на одном локализована дырка, а на другом два электрона [16].

В оптических волоконных световодах с примесями GeO_2 наблюдаются слабые потери (около 2 дБ/км) в видимом диапазоне, которые, несмотря на слабость, не могут быть объяснены только рассеянием. Очевидно, имеет место поглощение, но оно слабое и зависит от технологии производства конкретного световода. Полосы поглощения недостаточно четко выражены, поэтому их интерпретация до настоящего момента была затруднена. Для того чтобы прояснить этот вопрос использовалось УФ облучение как способ воздействия на полосу поглощения. Известно, что германосиликатные волоконные световоды чувствительны к УФ облучению, позволяющему изменять отдельные составляющие полосы поглощения.

Исследовались спектры поглощения после облучения линиями Ar^+ -лазера 333, 351 и 364 нм [17], при этом разрушаются кислорододефицитные центры и создаются различные парамагнитные центры [18]. Это GeE, Ge(1), Ge(2), поглощающие УФ излучение ($\lambda < 400$ нм), и безмостиковый кислород (NBOHC — nonbridged oxygen hole centers), поглощающий также видимый свет ($\lambda = 630$ нм). Создаются также диамагнитные центры, поглощающие ближний УФ и переизлучающие в красном диапазоне ($\lambda = 650$ нм), они связаны с дефектами вытяжки при производстве волокна. Далее в этом разделе мы будем называть их "центрами красной люминесценции" (ЦКЛ). Фотостимулированное создание или уничтожение вышеупомянутых дефектов приводит к изменению показателя преломления и полос поглощения световода.

Отжиг при 900 °C уничтожает все индуцированные УФ излучением дефекты и восстанавливает начальное состояние, поэтому УФ излучение можно рассматривать как параметр, управляющий селективными переходами между различными состояниями дефектов. Это дает возможность извлекать отдельные полосы поглощения, соответствующие различным дефектам. Изменение концентрации примесей GeO_2 или технологии производства волоконного световода приводит к неселективным изменениям состояний дефектов и измерение полос отдельных дефектов становится проблематичным.

Изучение наведенного УФ поглощения позволило измерить полосы поглощения ЦКЛ ($\lambda = 438$ нм) и ЭПЗ ($\lambda = 556$ нм). Спектры поглощения записывались с помощью экспериментальной установки, в которой источником белого света служила галогеновая лампа, а приемником — монохроматор и ФЭУ-100, спектры пропускания измерялись в диапазоне 390–750 нм. Германосиликатная сердцевина волокна облучалась УФ через выходной торец волокна или сбоку через кварцевую оболочку после удаления полимерного покрытия.

Индуктированные УФ излучением 351 нм потери в 20-сантиметровом световоде показаны на рис. 5. Излучение вводилось в сердцевину с помощью кварцевой линзы ($F = 1$ см), падающая мощность составляла 100 мВт, время облучения — 10 и 30 мин. На фоне хвоста

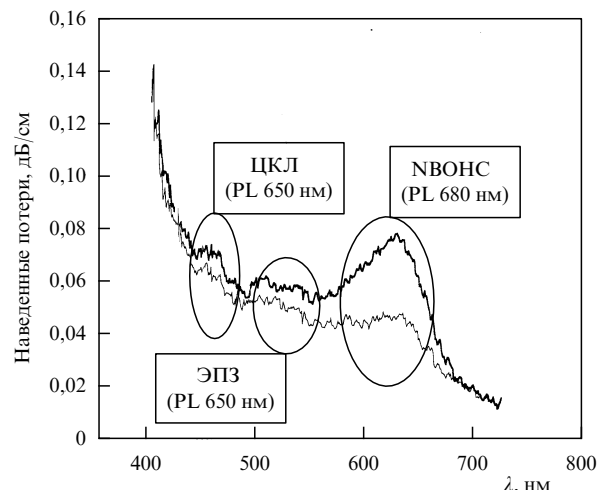


Рис. 5. Наведенные потери в световоде с 10 %-ной молярной концентрацией GeO_2 после УФ облучения 351 нм.

сильного коротковолнового поглощения имеются еще три полосы, соответствующие поглощению ЦКЛ, ЭПЗ и NBOHC. Интенсивная полоса 630 нм принадлежит NBOHC, при облучении ближним УФ она наблюдается только в световодах со значительным содержанием ОН-групп и хорошо изучена. Две близкие полосы возрастают в области 420–600 нм с увеличением дозы УФ облучения.

Посредством УФ облучения 351 нм участка световода длиной 5 мм при интенсивности падающего излучения 1 кВт/см² были получены две четко выраженные полосы поглощения в области 400–600 нм (рис. 6). Мы приписываем полосу 438 нм к поглощению ЦКЛ, так как при облучении германосиликатных световодов излучением Ar^+ -лазера с длиной волны 333, 351, 364, 458, 488 и 502 нм наблюдалась характерная фотолюминесценция $\lambda = 650$ нм. Полосу поглощения 556 нм мы связываем с образованием ЭПЗ, так как при возбуждении линиями 488, 502, 514, 528 и 532 нм (вторая гармоника Nd:YAG-лазера) в световодах наблюдалась широкая полоса люминесценции $\lambda = 750$ нм, вызванная рекомбинацией упомянутых экситонов (см. рис. 4).

Тот факт, что две полосы поглощения на рис. 6 принадлежат разным дефектам, был установлен в экспе-

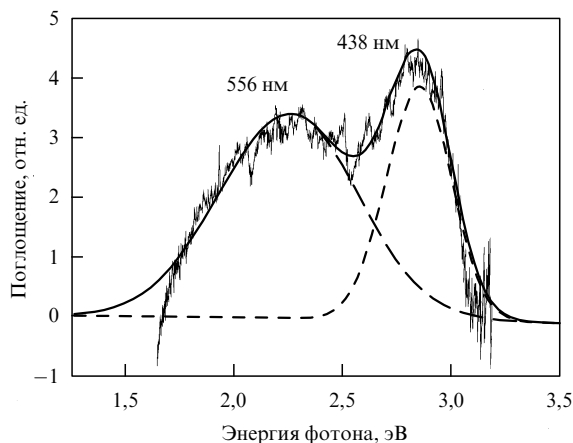


Рис. 6. Полоса поглощения ЦКЛ ($\lambda = 438$ нм) и ЭПЗ ($\lambda = 556$ нм) при 12 %-ной молярной концентрации GeO_2 после УФ облучения 333–364 нм.

рименте по фоторазрушению ЦКЛ излучением, попадающим в полосу поглощения 435 нм. Участок волокна предварительно облучался УФ 244 нм (вторая гармоника линии Ar^+ -лазера 488 нм) дозой 4 кДж/см², что приводило к разрушению кислорододефицитных центров и образованию ЦКЛ. Затем этот же участок подвергался УФ облучению 364 нм, после чего наблюдалось троекратное уменьшение ЦКЛ, которое происходило по экспоненциальному закону ($\tau \approx 1$ с). При этом создавались Ge-центры, которые, поглощая фотон полосы 556 нм, образовывали ЭПЗ.

После окончательного разрушения ЦКЛ полоса поглощения ЭПЗ становилась доминирующей (рис. 7). Полоса люминесценции ЭПЗ (см. рис. 4) измерялась независимо и в более широком частотном диапазоне (рис. 8). Двухполосному поглощению на рис. 6 соответствует двухполосная люминесценция на рис. 8: возбуждение линиями 528, 458 и 488 нм ведет соответственно к люминесценции ЭПЗ, ЦКЛ и их суперпозиции [17].

Измерения полос поглощения и люминесценции ЭПЗ дают возможность оценить кулоновское взаимодействие

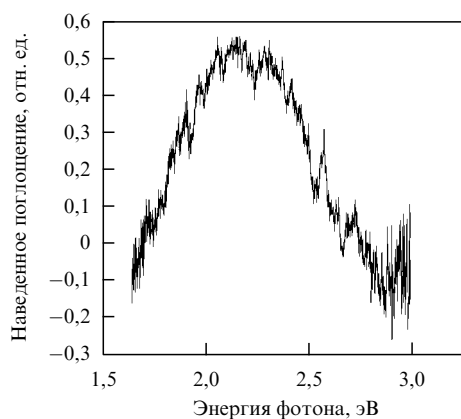


Рис. 7. Наведенное поглощение в световоде с 12 %-ной молярной концентрацией GeO_2 , предварительно облученном УФ 244 нм, после УФ облучения 364 нм (создание полосы ЭПЗ в результате разрушения ЦКЛ).

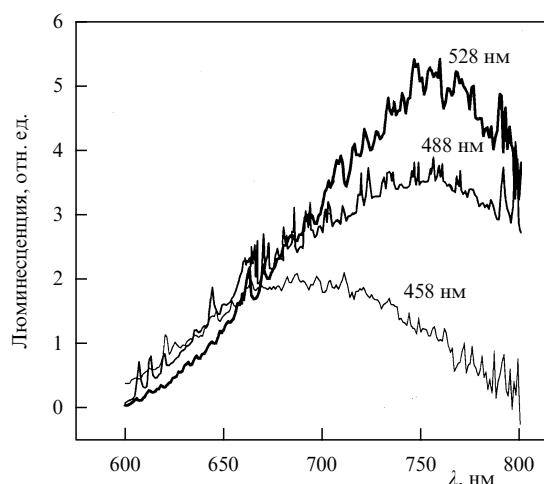


Рис. 8. Сильная полоса люминесценции ЭПЗ, соответствующая переходам электрона между различными Ge-центрами при разных длинах волн возбуждающего излучения ("продолжение" рис. 4 в область $\delta\nu > 7000 \text{ см}^{-1}$).

U двух электронов на одном Ge-центре и стоков сдвиг A (рис. 36). Экспериментальные значения энергий возбуждающего фотона $h\nu_e = U + A \approx 2,22 \text{ эВ}$ ($\lambda = 550 \text{ нм}$), а фотона люминесценции $h\nu_L = U - A \approx 1,63 \text{ эВ}$ ($\lambda = 750 \text{ нм}$), откуда $U = (h\nu_e + h\nu_L)/2 \approx 1,9 \text{ эВ}$ и $A = (h\nu_e - h\nu_L)/2 \approx 0,3 \text{ эВ}$. Поскольку $A \gg h\nu_D$, в данном случае мы имеем сильную электрон-фононную связь, характерную как раз для ЭПЗ, в энергию которых основной вклад дает кулоновское взаимодействие разнесенных электронов и дырок, сильно зависящее от расстояния между ними (велики производные от энергии состояния по смещениям атомов).

Таким образом, ряд экспериментов, описанных в этом разделе, выявил новый тип возбуждений, возникающих в силикатном волоконном световоде при добавлении примесей GeO_2 , — экситон с переносом заряда. Под воздействием излучения электрон переходит с примесного Ge-центра в матрицу или на другой Ge-центр. ЭПЗ возбуждается одним квантом зеленого света, локализован в пространстве и имеет статический дипольный момент. ЭПЗ стали базой для оригинальной теоретической модели описания генерации второй гармоники в германосиликатных волоконных световодах, представленной в последующих разделах.

3. Положительная обратная связь в отклике на статическое электрическое поле

3.1. Отклик двухуровневой системы ЭПЗ

Рассматривая электрон-дырочную кинетику в поле световой волны, необходимо принимать во внимание, что в стекле существуют два типа электрон-дырочных состояний: свободные состояния с волновыми функциями, покрывающими весь образец, и связанные состояния с волновыми функциями, локализованными в области потенциальных ям. Энергии связанных состояний находятся внутри "щели" между разрешенными энергиями свободных состояний. Высокоэнергетичные фотоны возбуждают свободные электрон-дырочные пары, в то время как низкоэнергетичные фотоны (с энергиями меньше ширины "щели") вызывают переходы между локализованными состояниями. Далее в этом разделе нас будут интересовать переходы электрона с примесного Ge-центра в матрицу или на другой Ge-центр. Экспериментальное наблюдение таких переходов в спектрах поглощения и люминесценции описано в предыдущем разделе.

На основе экспериментальных данных был сделан вывод, что в силикатном стекле с примесями GeO_2 под воздействием излучения возникают возбуждения нового типа, связанные с пространственным переносом электрона (ЭПЗ). При таком возбуждении возникает пространственно разделенная локализованная пара электрон-дырка, имеющая статический дипольный момент. ЭПЗ эффективно возбуждаются, поглощая излучение на частоте второй гармоники, тогда как излучение фундаментальной частоты не возбуждает эти состояния. Электроны, локализованные в менее глубоких потенциальных ямах, быстро релаксируют, переходя в более глубокие. Только такие низкоэнергетичные и поэтому долгоживущие возбуждения играют важную роль в процессе самоорганизации. Они рассматриваются ниже.

Сечение возбуждения ЭПЗ и скорость рекомбинации на одном Ge-центре соответственно равны

$$\sigma(\omega) = \sigma_0 \exp \left(-\frac{(2\omega - \varepsilon - A)^2}{\Delta^2} - \kappa R \right), \quad (3.1)$$

$$\gamma = \gamma_0 \exp(-\kappa R).$$

Здесь 2ω — частота фотона накачки, ε — энергия безфононного возбуждения ЭПЗ, A — стоксов сдвиг, $\Delta = 10^{-2} - 10^{-1}$ эВ — однородная ширина линии, $\sigma_0 \approx 10^{-18}$ см², R — расстояние переноса электрона, $\gamma_0 \approx 10^8$ с⁻¹, $\kappa \approx 5 \times 10^7$ см⁻¹. Значения ε , A , Δ и σ_0 , вообще говоря, различны для различных Ge-центров из-за наличия неоднородного уширения, что детально учтено в разделе 3.3. Электрон совершает переходы преимущественно вдоль и против направления поляризации света [13], вероятности переходов в разных направлениях равны. Наложение электрического поля приводит к его взаимодействию со статическим дипольным моментом ЭПЗ, и энергия возбуждения ЭПЗ изменяется на энергию этого взаимодействия: $\varepsilon \rightarrow \varepsilon - \mathbf{d}\mathbf{E}$, где \mathbf{d} — статический дипольный момент ЭПЗ, \mathbf{E} — локальное электрическое поле.

Таким образом, поле расщепляет полосу поглощения (3.1) для ЭПЗ, дипольный момент которых направлен вдоль и против приложенного поля: $\varepsilon \rightarrow \varepsilon \pm dE$ (рис. 9), и переходы в одном из направлений становятся доминирующими. В каком направлении преимущественно переносится электрон с образованием ЭПЗ, — это зависит от расположения частоты возбуждающего излучения 2ω по отношению к максимуму полосы поглощения $\varepsilon + A$.

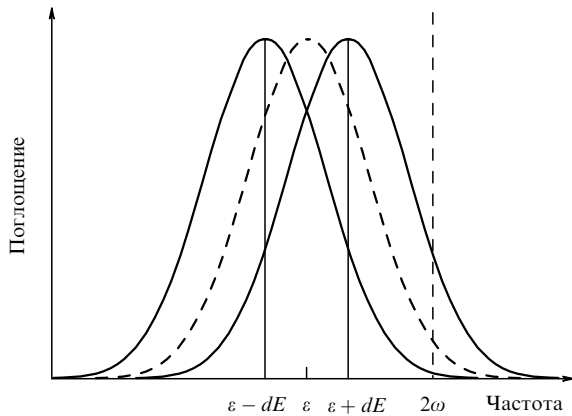


Рис. 9. Расщепление полосы поглощения ЭПЗ во внешнем поле E . Преимущественно возбуждаются ЭПЗ с дипольным моментом \mathbf{d} , направленным против поля \mathbf{E} ; поляризация ЭПЗ усиливает поле E (положительная обратная связь).

Из эксперимента следует, что для второй гармоники Nd:YAG-лазера и возбуждений, возникающих в германо-силикатном световоде, выполняется условие $2\omega > \varepsilon + A$. Это означает, что ЭПЗ с энергией возбуждения $\varepsilon + dE$ находятся ближе к частоте возбуждающего излучения и они возбуждаются преимущественно. Дипольный момент таких ЭПЗ направлен против электрического поля, и возникающая поляризация $\mathbf{P} = \sum \mathbf{d}$, которая также направлена против приложенного поля \mathbf{E} , приводит к его усилению. Таким образом, в системе возникает положительная обратная связь (или отрицательная вос-

приимчивость): в ответ на приложение затравочного электрического поля ЭПЗ возбуждаются не в случайных направлениях, а с дипольными моментами, направленными преимущественно так, что это поле усиливается.

Проведем самосогласованный анализ отклика системы, заменяя локальное электрическое поле макроскопическим [15]. Пусть ρ_+ и ρ_- — вероятности обнаружения Ge-центра в состояниях с дипольными моментами, направленными соответственно против и вдоль приложенного электрического поля \mathbf{E} . Тогда в приближении самосогласованного поля скоростные уравнения для вероятностей суть

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_+ &= I\sigma_0(1 - \rho_+ - \rho_-) \exp \left(-\frac{(2\omega - \varepsilon_+ - A)^2}{\Delta^2} - \kappa R \right) - \\ &\quad - \gamma_0 \exp(-\kappa R) \rho_+, \\ \dot{\rho}_- &= I\sigma_0(1 - \rho_+ - \rho_-) \exp \left(-\frac{(2\omega - \varepsilon_- - A)^2}{\Delta^2} - \kappa R \right) - \\ &\quad - \gamma_0 \exp(-\kappa R) \rho_-, \\ \varepsilon_+ &= \varepsilon + dE, \quad \varepsilon_- = \varepsilon - dE, \quad \mathbf{E} = \mathbf{E}_i - 4\pi q\mathbf{P}, \\ \mathbf{P} &= \alpha\mathbf{E} + n\langle\mathbf{d}\rangle, \quad \langle\mathbf{d}\rangle = \mathbf{d}(\rho_- - \rho_+). \end{aligned} \quad (3.2)$$

Здесь I — интенсивность накачки, ε_+ и ε_- — энергии ЭПЗ в двух состояниях, \mathbf{E} — макроскопическое электрическое поле, являющееся суммой начального поля \mathbf{E}_i и поляризационной добавки $-4\pi q\mathbf{P}$, поляризация \mathbf{P} включает линейную составляющую $\alpha\mathbf{E}$ (α — восприимчивость среды) и нелинейную поляризацию ЭПЗ $n\langle\mathbf{d}\rangle$, \mathbf{d} — дипольный момент ЭПЗ, n — их концентрация, q — геометрический фактор: $q = 1$ для плоской геометрии, $q = 1/2$ для цилиндрической геометрии и $q = 1/3$ для сферы [19].

Преимущественное заселение состояния "+" с дипольным моментом, направленным против поля \mathbf{E} и обладающего большей энергией, соответствует положительной обратной связи. Термодинамическое заселение состояния "-", обладающего меньшей энергией (дипольный момент направлен вдоль поля), всегда больше ($\rho_- > \rho_+$), что соответствует отрицательной обратной связи в полном согласии с принципом Ле-Шателье, справедливым для закрытых систем. На открытую систему (каковой является исследуемая система во внешнем световом поле) принцип Ле-Шателье не распространяется, и ее отклик может быть любым.

Стационарное решение (3.2) несложно найти графически, особенно для случая $\rho_+, \rho_- \ll 1$. Действительно, при $\dot{\rho}_+ = \dot{\rho}_- = 0$ имеем

$$\begin{aligned} \rho_+ &= \frac{I\sigma_0}{\gamma_0} \exp \left(-\frac{(2\omega - A - \varepsilon - \bar{d}\bar{E})^2}{\Delta^2} \right), \\ \rho_- &= \frac{I\sigma_0}{\gamma_0} \exp \left(-\frac{(2\omega - A - \varepsilon + \bar{d}\bar{E})^2}{\Delta^2} \right). \end{aligned}$$

Далее, вычисляя по формулам (3.2) средний дипольный момент и поляризацию, для поля \mathbf{E} получаем трансцендентное уравнение

$$\begin{aligned} \bar{E} &= \frac{\bar{E}_i}{1 + 4\pi q\alpha} + \frac{4\pi q n I \sigma_0 d}{(1 + 4\pi q\alpha)\gamma_0} \left[\exp \left(-\frac{(2\omega - A - \varepsilon - \bar{d}\bar{E})^2}{\Delta^2} \right) - \right. \\ &\quad \left. - \exp \left(-\frac{(2\omega - A - \varepsilon + \bar{d}\bar{E})^2}{\Delta^2} \right) \right]. \end{aligned} \quad (3.3)$$

Графическое решение (3.3) показывает наличие вышеупомянутой положительной обратной связи и бистабильности в зависимости $E(E_0)$.

Результат численного решения системы (3.2) приведен на рис. 10. В качестве начальных условий принималось основное состояние ($\rho_+ = \rho_- = 0$), затем искалось асимптотическое состояние системы на больших временах. Такой подход автоматически отвечает на вопрос об устойчивости: только устойчивые состояния могут быть достигнуты. Для перехода к безразмерным переменным вводились параметры

$$\xi = \frac{2\omega - \varepsilon - A}{\Delta}, \quad \mu = \frac{I\sigma_0}{\gamma_0}, \quad \tilde{E} = \frac{dE}{\Delta},$$

$$\tilde{E}_i = \frac{dE_i}{(1 + 4\pi q\alpha)\Delta}, \quad g = \frac{4\pi qnd^2}{(1 + 4\pi q\alpha)\Delta}, \quad \tau = \gamma_0 t. \quad (3.4)$$

Переход системы к самоупорядоченному состоянию рассматривался при интенсивной накачке ($\mu = 1$), что соответствует значению $I \approx 4 \times 10^7$ Вт/см².

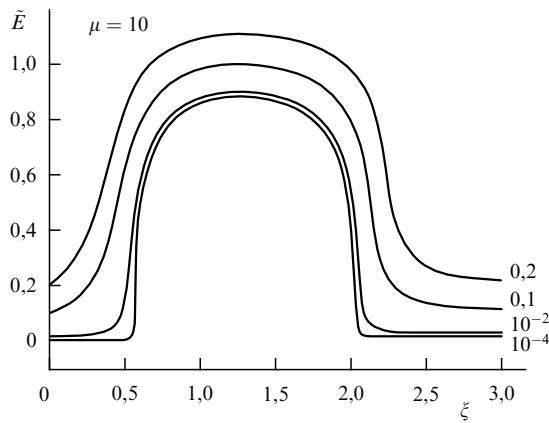


Рис. 10. Зависимость результирующего статического поля \tilde{E} от частоты возбуждающего излучения при различных значениях затравочного поля \tilde{E}_i .

Таким образом, независимо от значения начального поля \tilde{E}_i в определенном диапазоне частот система поляризуется против поля так, что безразмерное результирующее поле, усиленное поляризацией, достигает значения $\tilde{E} \approx 1$, что соответствует физическому полю $E \approx 10^5$ В/см. Другие параметры задачи принимались равными $d = 5 \times 10^{-18}$ СГС, $A = 10^{-2} - 10^{-1}$ эВ. Так как усиливающая поляризационная добавка не зависит от начального поля \tilde{E}_i в широком диапазоне значений $\tilde{E}_i \approx 10^{-4} - 2 \times 10^{-1}$, начальное поле влияет лишь на направление поляризации, а ее значение зависит от внутренних свойств системы. В данном случае самоорганизация заключается в упорядочении дипольных моментов ЭПЗ в поле световой волны (ориентационное упорядочение).

3.2. Отклик системы ЭПЗ с далекими переносами электрона

Модель возбуждения ЭПЗ с переносом электрона в двух направлениях на фиксированное расстояние в пространстве позволяет получить качественную картину самоорганизации и соответствующей положительной обратной связи, оценить порядок величины усиленного результирующего поля. Расширенная модель, в которой

исследуются возможные переходы электрона в разных направлениях и на разные расстояния в пространстве, представлена ниже [20]. Эта модель позволяет оценить особую роль далеких переходов, приводящих к долгоживущим возбуждениям, и влияние интенсивности накачки на возникновение самоорганизации в системе.

Пусть электрон под действием накачки переходит из примесного Ge-центра в матрицу так, что R_m — расстояние переноса и d_m — соответствующий дипольный момент. Сечение возбуждения ЭПЗ и скорость рекомбинации описываются формулами (3.1), а система кинетических уравнений (3.2) для двух возможных возбужденных состояний принимает вид

$$\dot{\rho}_m = I\sigma_0 \left(1 - \sum_l \rho_l\right) \cos^2 \theta_m \times$$

$$\times \exp \left(- \frac{(2\omega - \varepsilon_m - A)^2}{\Delta^2} - \kappa R_m \right) - \gamma_0 \exp(-\kappa R_m) \rho_m, \quad (3.5)$$

$$\varepsilon_m = \varepsilon - \mathbf{d}_m \mathbf{E}, \quad \mathbf{E} = \mathbf{E}_i - 4\pi q \mathbf{P},$$

$$\mathbf{P} = \alpha \mathbf{E} + n \langle \mathbf{d} \rangle, \quad \langle \mathbf{d} \rangle = \sum_m \mathbf{d}_m \rho_m,$$

где ρ_m — вероятность найти Ge-центр в возбужденном состоянии m , θ_m — угол между направлением переноса электрона \mathbf{R}_m и плоскостью поляризации света, ε_m — энергия безфонного возбуждения ЭПЗ во внешнем электрическом поле \mathbf{E} ; матрица рассматривается как кубическая решетка (a — постоянная решетки, $\kappa = 1/a$).

Нами было найдено численное решение системы (3.5) для возможных переходов электрона из Ge-центра в любую точку $m = (m_1, m_2, m_3)$ кубической решетки, вплоть до максимального расстояния переноса $R^2 \geq m_1^2 + m_2^2 + m_3^2$, которое принималось равным $R = 1 - 7$. Переход к безразмерным переменным осуществлялся по формулам (3.4).

Оказалось, что, как и в модели, рассмотренной в разделе 3.1, результирующее электрическое поле \tilde{E} не зависит от начального поля \tilde{E}_i . Соответствующий график зависимости поля от частоты накачки (при асимптотически больших временах) для различных максимальных расстояний переноса R показан на рис. 11. Результаты получены для слабой накачки ($\mu = 0.01$).

Как видно из приведенных результатов, усиление начального поля возникает при любой накачке, если включаются переносы электрона на большие расстояния. Вероятность w_m перехода электрона в точку m убывает экспоненциально с расстоянием переноса: $w_m \propto \exp(-\kappa R_m)$. Тем не менее быстрый спад вероятности заселения с расстоянием переноса R_m не означает, что роль состояний с большим расстоянием переноса электрона мала. Скорость распада возбужденного ЭПЗ $\gamma_m = \gamma_0 \exp(-\kappa R_m)$ пропорциональна тому же экспоненциальному множителю, и в стационарном случае вероятность найти электрон в возбужденном состоянии m не зависит от расстояния переноса R_m . Состояния с большим расстоянием переноса накачиваются медленнее, но они имеют большее время жизни; поэтому после выключения накачки состояния с малым расстоянием переноса быстро релаксируют, а выживают только состояния с большим расстоянием переноса. Эти состояния имеют больший статический дипольный момент и играют большую роль в самоорганизации ЭПЗ.

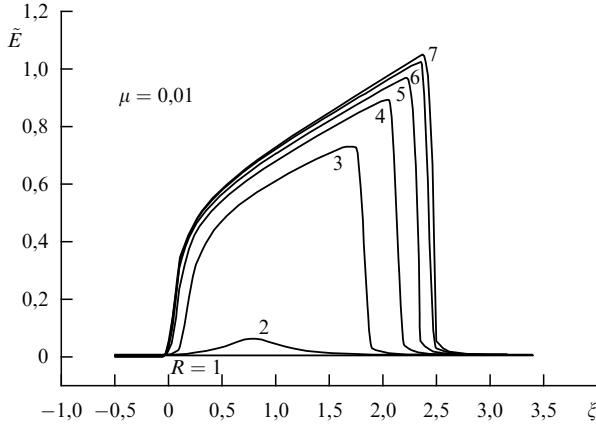


Рис. 11. Зависимость результирующего статического поля \tilde{E} от частоты возбуждающего излучения при различных значениях максимального расстояния переноса R .

Чем больше расстояние переноса электрона, тем больше время, требуемое для заселения такого состояния: $t \propto \exp(\kappa R_m)$. Следовательно, чем больше время эксперимента, тем слабее может быть накачка, вызывающая самоорганизацию ЭПЗ, приводящую к генерации второй гармоники. В первом эксперименте [5] изначально слабая вторая гармоника привела к самоорганизации после 5 часов облучения. Самоорганизация обычно имеет порог, однако с ростом времени приготовления состояния порог стремится к нулю.

3.3. Отклик системы

локализованных электронов и дырок

Наиболее общей микроскопической моделью, позволяющей учесть неоднородное уширение и возможность далеких переносов электрона в пространстве, является модель независимых электронов и дырок, представленная ниже [21].

Вероятность w_{ij} перехода электрона под действием накачки из ловушки i в ловушку j есть

$$w_{ij} = I\sigma_0 \cos^2 \theta_{ij} \exp \left(-\frac{(2\omega - \varepsilon_{ij} - A)^2}{\Delta^2} - \kappa_{ij} R_{ij} \right), \quad (3.6)$$

где θ_{ij} — угол между \mathbf{R}_{ij} и поляризацией света, множитель κ_{ij} определяется степенью перекрытия волновых функций начального и конечного состояний и зависит от соответствующих энергий ε_i и ε_j . Вероятность (3.6) убывает экспоненциально с расстоянием переноса $|\mathbf{R}_{ij}| = |\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i|$ и имеет резонанс при $2\omega = \varepsilon_{ij} + A$, где $\varepsilon_{ij} = \varepsilon_j - \varepsilon_i$, A — стоксов сдвиг. Волновые функции электронов, находящихся на глубоких энергетических уровнях, быстро спадают по мере удаления от области локализации; волновые функции электронов с большими значениями энергий спадают медленнее.

Решение уравнения Шрёдингера для электрона, локализованного в ловушке i , вне потенциальной ямы дает спад волновой функции с расстоянием по закону

$$|i\rangle = \sqrt{\kappa_i} \exp(-\kappa_i |\mathbf{R} - \mathbf{R}_i|),$$

где

$$\kappa_i = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (V - \varepsilon_i)} = \kappa_0 \sqrt{1 - \frac{\varepsilon_i}{V}}, \quad (3.7)$$

V — расстояние от уровня Ферми до края запрещенной зоны, ε_i — энергия состояния относительно уровня Ферми. Хотя примесные стекла не являются термодинамически равновесной средой, и для них, строго говоря, уровень Ферми не определен, мы, как обычно, введем его для описания частичного равновесия, понимая под уровнем Ферми уровень, выше которого электронные состояния не заняты, и считая, что он проходит посередине запрещенной зоны. Таким образом, ширина запрещенной зоны есть $2V \approx 8$ эВ, и для количественной оценки κ_0 мы получаем $\kappa_0 = (2m/\hbar^2 V)^{1/2} \approx 2 \times 10^{-7} \text{ см}^{-1}$.

Матричный элемент перехода из $|i\rangle$ в $|j\rangle$, приводящий к формуле вероятности (3.6), включает в себя интеграл перекрытия волновых функций начального и конечного состояний, равный

$$\begin{aligned} \langle i|j\rangle &= \frac{\sqrt{\kappa_i \kappa_j}}{\kappa_i + \kappa_j} \exp(-\kappa_i R_{ij}) + \\ &+ \frac{\sqrt{\kappa_i \kappa_j}}{\kappa_i - \kappa_j} [\exp(-\kappa_j R_{ij}) - \exp(-\kappa_i R_{ij})] + \\ &+ \frac{\sqrt{\kappa_i \kappa_j}}{\kappa_i + \kappa_j} \exp(-\kappa_j R_{ij}). \end{aligned} \quad (3.8)$$

Поскольку интеграл (3.8) резко убывает с расстоянием, в сумме будут доминировать члены, соответствующие медленнее спадающей экспоненте, т.е. с экспоненциальной точностью можно считать $\kappa_{ij} = \min\{\kappa_i, \kappa_j\}$. В данном приближении κ_{ij} есть расстояние, на котором спадает волновая функция частицы с максимальной энергией. Волновая функция такой частицы спадает медленно, и именно этой функцией определяется матричный элемент (3.8).

Энергия электрона ε_i зависит от пространственного распределения окружающих электронов и дырок и определяется кулоновским взаимодействием:

$$\varepsilon_i = \varepsilon_i^{(0)} + \sum_m^{(e)} \frac{e^2}{R_{im}} - \sum_m^{(h)} \frac{e^2}{R_{im}}, \quad (3.9)$$

где суммы $\sum_m^{(e)}$ и $\sum_m^{(h)}$ берутся по уже возбужденным электронным и дырочным состояниям соответственно, $\varepsilon_i^{(0)}$ — энергия электронного уровня ловушки в основном состоянии.

Помимо переходов электрона под действием излучения с повышением энергии, определяемых формулой (3.6), существуют переходы с понижением энергии. Их вероятность определяется той же формулой (3.6), но с заменой $A \rightarrow -A$. Возможны также спонтанные переходы $i \rightarrow j$ с понижением энергии (рекомбинация, если электрон пересекает уровень Ферми, и релаксация в противном случае). Такие переходы можно разделить на два типа [22]: радиационные, в которых разность энергий уносится фотоном, со скоростью распада

$$\gamma_{ij} = \gamma_0 \exp(-\kappa_{ij} R_{ij}) \quad (3.10)$$

и фоновые, скорость распада которых определяется энергией $|\varepsilon_{ij}| = |\varepsilon_j - \varepsilon_i|$, перешедшей в колебания решетки:

$$\Gamma_{ij} = \gamma_1 \exp \left(-\kappa_{ij} R_{ij} - \frac{|\varepsilon_{ij}|}{\hbar \omega_D} \right). \quad (3.11)$$

Формула (3.11) учитывает, что вероятность фонового перехода уменьшается экспоненциально с ростом

числа фононов, участвующих в процессе, т.е. с разностью энергий начального и конечного состояний. Множители γ_0 и γ_1 могут быть оценены из эксперимента: для близких переходов скорость распада γ_{ij} должна быть порядка обратного времени жизни возбужденных электронных состояний в атоме, а скорость распада Γ_{ij} равна скорости межмолекулярной релаксации, что дает значения $\gamma_0 \approx 10^8 \text{ с}^{-1}$ и $\gamma_1 \approx 10^{12} \text{ с}^{-1}$.

Рассмотренные в разделе 2 эксперименты показали, что систему потенциальных ям (ловушек) в германо-силикатном световоде можно описывать в рамках следующей модели. Ловушка в матрице изначально имеет один электронный уровень $\varepsilon_i^{(0)}$, тогда как Ge-центр может быть занят одним электроном (энергия состояния $\varepsilon_i^{(0)}$) или двумя электронами (энергия состояния $2\varepsilon_i^{(0)} + U$, где U — энергия кулоновского взаимодействия электронов). Мы наблюдали как линейную зависимость люминесценции от концентрации Ge-центров, соответствующую электронным переходам Ge-центр–матрица, так и сверхлинейную, отвечающую переходам Ge-центр–Ge-центр (рис. 36).

Ловушки в матрице и Ge-центры распределены по объему образца случайным образом, и их начальные уровни энергии $\varepsilon_i^{(0)}$ распределены также случайно в соответствии с плотностями состояний $\rho(\varepsilon_i^{(0)})$. Мы исследовали различные концентрации Ge-центров и гауссовы плотности вероятностей $\rho(\varepsilon_i^{(0)})$ с различными дисперсиями Δ_{Ge} . Счет начинался с основного состояния, где все электронные уровни ниже энергии Ферми ($\varepsilon_i^{(0)} < 0$) заняты, а уровни с $\varepsilon_i^{(0)} > 0$ свободны. Компьютерное моделирование электрон-дырочной кинетики проводилось с учетом формул для вероятностей переходов (3.6), (3.10), (3.11), на каждом временном шаге рассчитывалась энергия электрона (3.9) и экспоненциальный фактор $\chi_{ij}(\varepsilon_i^{(0)}, \varepsilon_j^{(0)})$, определяемый формулой (3.7). Мы исследовали зависимость от времени поляризации образца $\mathbf{P}(t)$ для различных значений внешнего поля \mathbf{E}_0 , интенсивности накачки I и параметров среды. Безразмерные параметры задачи имели вид

$$\tau = \gamma_0 t, \quad r = \frac{R}{a}, \quad \mu = \frac{I\sigma_0}{\gamma_0}, \quad Q = \frac{e^2}{a\Delta}, \quad \tilde{E} = \frac{Eea}{\Delta}$$

при среднем расстоянии $a \approx 5 \times 10^{-8} \text{ см}$ между ловушками. Объем образца определялся как $V = Na^3$, где $N = N_1 N_2 N_3$ — полное число ловушек. Поляризация образца

$$\mathbf{P} = \frac{1}{V} \left(\sum_j^{(h)} |e| \mathbf{R}_j - \sum_i^{(e)} |e| \mathbf{R}_i \right), \quad (3.12)$$

измерялась в единицах $|e|/a^2 = 2 \times 10^5 \text{ СГС} = 64 \text{ мКл/см}^2$; суммы $\sum_m^{(e)}$ и $\sum_m^{(h)}$ в (3.12) брались по возбужденным электронным и дырочным состояниям.

Релаксация и рекомбинация (как фотонная (3.10), так и фононная (3.11)) приводят к обычной подвижности в направлении действующей силы $e\mathbf{E}_0$, что формирует поляризацию \mathbf{P} , направленную вдоль внешнего поля \mathbf{E}_0 (нормальная отрицательная обратная связь, ослабляющая поле \mathbf{E}_0). Свет может переносить электроны в направлении, противоположном действующей силе. Мы наблюдали соревнование этих двух процессов для различных внешних параметров (\mathbf{E}_0 , I , ω) и параметров матрицы. В случае малой подвижности электронов (дырок) переносы под действием света преобладают, и

возникающая поляризация \mathbf{P} направлена против внешнего поля \mathbf{E}_0 , что приводит к его усилению (положительная обратная связь). При концентрациях, превышающих 10 мол.%, доминируют переходы между Ge-центрами, а матрица не активна (плотность электронных состояний в ловушках матрицы в области энергии Ферми мала) [16].

Исследование гауссова распределения энергий электронных уровней Ge-центров $\varepsilon_i^{(0)}$ с дисперсиями Δ_{Ge} , расположенных ниже уровня Ферми, так что второй электронный уровень примесного центра с энергией $\varepsilon_i^{(0)} + U > 0$ находится выше уровня Ферми, показали, что возможны переходы в свободные состояния с энергиями $\varepsilon_i^{(0)} + U$, также имеющие гауссово распределение плотности. В такой системе наблюдается положительная обратная связь в отклике на внешнее статическое поле (рис. 12).

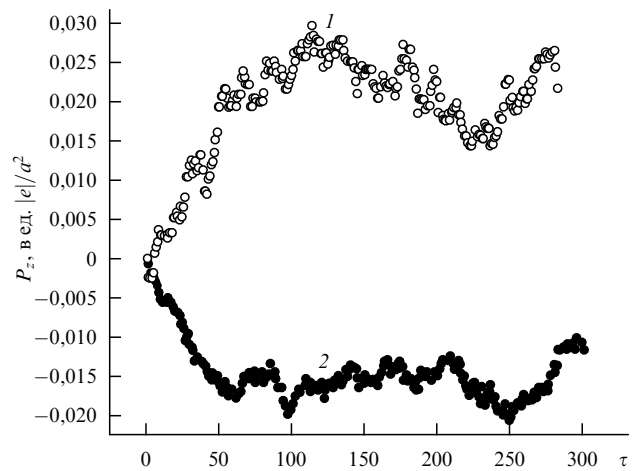


Рис. 12. Зависимость поляризации образца в z -направлении (вдоль внешнего поля) от времени для модели электронных переходов между Ge-центрами. Кривая 1 соответствует значениям параметров $\tilde{E}_0 = -0.25$, $\mu = 10^{-3}$, $a = 2.5 \text{ нм}$, $1/\chi = 0.1 \text{ нм}^{-1}$, $\Delta_{\text{Ge}} = 1.5 \text{ эВ}$, $U_0 = -1 \text{ эВ}$, $U = 2 \text{ эВ}$, $\hbar\omega = 2.5 \text{ эВ}$, $\gamma_1 = 0$, размер образца $6 \times 6 \times 60$. Кривая 2 — то же, но $\tilde{E}_0 = 2.5$, размер образца $6 \times 60 \times 6$.

Безразмерной поляризации $\mathbf{P} \approx 10^{-2}$ соответствует электрическое поле $\mathbf{E} = -4\pi q\mathbf{P} \approx 10^6 \text{ В/см}$. Причину, по которой переходы под действием света происходят в направлении, противоположном действующей силе, можно понять качественно. В данном случае плотность электронных состояний в окрестности уровня Ферми исчезающе мала и нет обычной подвижности электронов вдоль направления внешней силы $e\mathbf{E}_0$. Такая подвижность возникает только в возбужденном состоянии и определяется плотностью возбужденных частиц. При малых плотностях эта подвижность мала и доминируют переходы под действием света из основного состояния. Именно они дают положительную обратную связь.

Положительная обратная связь имеет место в широком классе веществ с низкой подвижностью электронов и дырок, включая системы с ненулевой плотностью состояний в окрестности уровня Ферми. Примеры такого поведения для неоднородно уширенного локального уровня показаны на рис. 13. Рисунки 12 и 13 демонстрируют упоминавшуюся выше ориентацию поляризации в направлении, противоположном внешнему полю. Вычисления при $\gamma_1 = 10\gamma_0$ качественно не

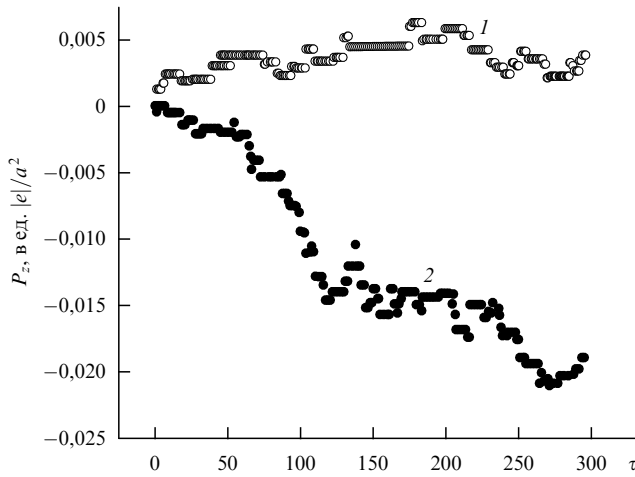


Рис. 13. Зависимость поляризации образца в z -направлении от времени для модели электронных переходов между ловушками в матрице. Кривая 1 соответствует значениям параметров $\rho(\varepsilon_i^{(0)}) = \exp[-(\varepsilon_i^{(0)}/\sqrt{2}\Delta)^2]$, $\tilde{E}_0 = -0.25$, $\mu = 10^{-3}$, $a = 2.5$ нм, $1/\kappa = 0.1$ нм $^{-1}$, $\Delta = 4.5$ эВ, $\hbar\omega = 2.4$ эВ, $\gamma_1 = 0$, размер образца $6 \times 60 \times 6$. Кривая 2 — то же, но $\tilde{E}_0 = 0.2$, $a = 2.0$ нм, размер образца $8 \times 80 \times 8$.

меняют наблюдаемой картины. Отметим также существование больших флуктуаций, превышающих нормальную величину $N^{-1/2}$. Детали расчетов можно найти в [21, 23, 24].

Таким образом, рассмотрение простейшей, расширенной и полной моделей, описывающих кинетику электронов и дырок, показало, что самоорганизация возбуждений приводит к возникновению положительной обратной связи в отклике на внешнее статическое поле: наводится поляризация, усиливающая слабое внешнее поле до 10^5 – 10^6 В/см. Возникающее в результате положительной обратной связи сильное статическое электрическое поле нарушает симметрию инверсии среды и делает возможной эффективную генерацию второй гармоники.

4. Распространение волн в германоцилатном волоконном световоде

4.1. Распространение слабой волны второй гармоники

Процесс распространения волны второй гармоники в германоцилатном волоконном световоде описывается волновым уравнением со специфической нелинейной правой частью:

$$\frac{n_{2\omega}^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}. \quad (4.1)$$

Обычно амплитуда второй гармоники на два порядка меньше амплитуды фундаментальной волны. В этой ситуации можно пренебречь нелинейными изменениями последней и рассматривать только изменение второй гармоники [25].

Запишем поля фундаментальной волны и искомой второй гармоники:

$$E_\omega = A_1(z) \exp[ik_\omega z - i\omega t], \\ E_{2\omega} = A_2(z) \exp[ik_{2\omega} z - 2i\omega t + i\psi_2(z)],$$

где амплитуда $A_2(z)$ и фаза $\psi_2(z)$ суть действительные и медленно меняющиеся переменные. Подставляя в (4.1) выражение для второй гармоники и записывая нелинейную поляризацию на удвоенной частоте в виде

$$P_{NL} = P_{2\omega} \exp[ik_{2\omega} z - 2i\omega t],$$

получаем уравнение для комплексной амплитуды второй гармоники:

$$\frac{\partial}{\partial z} [A_2 \exp(i\psi_2)] = i \frac{4\pi\omega}{cn_{2\omega}} P_{2\omega}, \quad (4.2)$$

где $n_{2\omega}$ — показатель преломления на удвоенной частоте.

Для того чтобы получить замкнутую систему, необходимо к волновому уравнению и вытекающему из него уравнению для комплексной амплитуды поля второй гармоники (4.2) добавить уравнения, описывающие отклик среды. Поляризация на удвоенной частоте $P_{2\omega}$ возникает благодаря тензору нелинейной поляризуемости $\chi^{(3)}$ при наличии сильного статического поля: $P_{2\omega} = \chi^{(3)} E_{dc} E_\omega^2$.

Рассмотрим механизм возникновения сильного статического поля E_{dc} . Фундаментальная волна и волна второй гармоники создают быструю нелинейную поляризацию

$$P_{dc}^{(0)} = \chi^{(3)} A_2 A_1^2 \exp[i(k_{2\omega} - 2k_\omega)z + i\psi_2].$$

Возникающее в результате "выпрямления" электрическое поле $E_{dc}^{(0)} = -4\pi q P_{dc}^{(0)}$ имеет небольшую амплитуду (около 1 В/см), но оно удовлетворяет необходимому для эффективной генерации второй гармоники условию фазового синхронизма и, действуя на медленную систему ЭПЗ, является необходимой "затравкой". ЭПЗ под действием накачки усиливают затравочное поле, сохраняя его направление в пространстве, т.е. фазу (механизм усиления рассмотрен в разделе 3).

Результирующее статическое поле стремится к насыщению:

$$E_{dc} \rightarrow -u \exp[i(k_{2\omega} - 2k_\omega)z + i\psi_2],$$

где амплитуда $u \approx \Delta/d \approx 10^5$ В/см (подробнее см. в разделе 3). Усиленное статическое поле нарушает симметрию инверсии и приводит к удвоению частоты за счет возникновения эффективной нелинейной восприимчивости второго порядка $\chi^{(2)}(z) = \chi^{(3)} E_{dc}(z)$. Так как согласно экспериментальным данным ЭПЗ возбуждается одним фотоном второй гармоники, скорость, с которой статическое поле E_{dc} стремится к насыщению, пропорциональна мощности второй гармоники и равна $\alpha_2 A_2^2$, где α_2 — коэффициент пропорциональности.

Будем искать решение для E_{dc} в виде

$$E_{dc}(z, t) = -A_0(z, t) \exp[i(k_{2\omega} - 2k_\omega)z + i\psi_0].$$

Моделирование показывает, что E_{dc} стремится к стационарному значению экспоненциально в соответствии с уравнением

$$\frac{\partial}{\partial t} A_0 [\exp(i\psi_0)] = \alpha_2 A_2^2 [u \exp(i\psi_2) - A_0 \exp(i\psi_0)]. \quad (4.3)$$

Уравнения (4.2) и (4.3) полностью описывают эволюцию амплитуды и фазы волны второй гармоники и статического поля в случае, когда амплитуда поля второй гармоники существенно меньше первой.

Переходя к безразмерным переменным по формулам

$$E_0 = \frac{A_0}{u}, \quad E_2 = \frac{A_2}{u}, \quad S = \kappa_0 z, \\ \kappa_0 = \frac{4\pi\omega\chi^{(3)}A_1^2}{cn_{2\omega}}, \quad \tau = \alpha_2 u^2 t \quad (4.4)$$

и разделяя в (4.2) и (4.3) амплитуды и фазы, мы получаем универсальную систему из четырех уравнений, которая сохраняет все свойства (4.2) и (4.3), но более удобна для дальнейшего исследования:

$$\frac{\partial E_2}{\partial S} = E_0 \sin(\psi_0 - \psi_2), \\ E_2 \frac{\partial \psi_2}{\partial S} = -E_0 \cos(\psi_0 - \psi_2), \\ \frac{\partial E_0}{\partial \tau} = -E_2^2 [E_0 - \cos(\psi_0 - \psi_2)], \\ E_0 \frac{\partial \psi_0}{\partial \tau} = -E_2^2 \sin(\psi_0 - \psi_2). \quad (4.5)$$

Система уравнений (4.5) замечательна тем, что в ней отсутствуют параметры, все они входят в масштабы величин (4.4). Формулы перехода к безразмерным переменным (4.4) позволяют оценить масштабы переменных, входящих в (4.5): единица напряженности поля $u \approx 10^5$ В/см, единица длины $\kappa_0^{-1} \approx 10$ см, единица времени равна $(\alpha_2 u^2)^{-1}$, что в соответствии с экспериментальным временем приготовления состояния второй гармоникой с амплитудой, примерно равной u [8], дает $(\alpha_2 u^2)^{-1} \approx 5$ мин.

Нетрудно видеть, что система уравнений (4.5) имеет стационарное решение:

$$\psi_0 = \psi_2, \quad E_0 = 1, \quad E_2 = \text{const},$$

т.е. имеется статическое электрическое поле, а генерация второй гармоники отсутствует. Таким образом, генерация второй гармоники возможна только на стадии приготовления, когда поле статической поляризации еще не достигло значения насыщения и имеется разность фаз $\psi_0 - \psi_2 \neq 0$, которая возникает вследствие запаздывания системы при $E_2 \ll 1$ (статическая поляризация формируется длительное время). В этой ситуации амплитуда второй гармоники изменяется по длине световода.

При возрастании амплитуды второй гармоники ($E_2 \approx 1$) запаздывание уменьшается, фаза статического поля быстрее следует за фазой поля второй гармоники ($\psi_0 - \psi_2 \rightarrow 0$). В результате, как видно из (4.5), система стремится к стационарному состоянию, имеющему, однако, тривиальный характер: изменяется только фаза второй гармоники, а ее амплитуда остается постоянной по длине световода. Генерация второй гармоники, таким образом, обладает свойством самовыключения.

Решение системы (4.5) численным методом для начальных значений статического поля $E_0(0, S) = 0$, $\psi_0(0, S) = 0$ и поля второй гармоники $E_2(\tau, 0) = 0,05$, $\psi_2(\tau, 0) = 0$ (что соответствует эксперименту с "затравочной" волной [8]) приведено на рис. 14. Из графика видно, что с возрастанием амплитуды второй гармоники запаздывание (разность фаз) стремится к нулю и ее рост прекращается. С этого момента происходит лишь вращение комплексной амплитуды второй гармоники. Длина насыщения по порядку величины равна $\kappa_0^{-1} \approx 10$ см, и дальнейшее увеличение длины световода не приводит к увеличению сигнала второй гармоники.

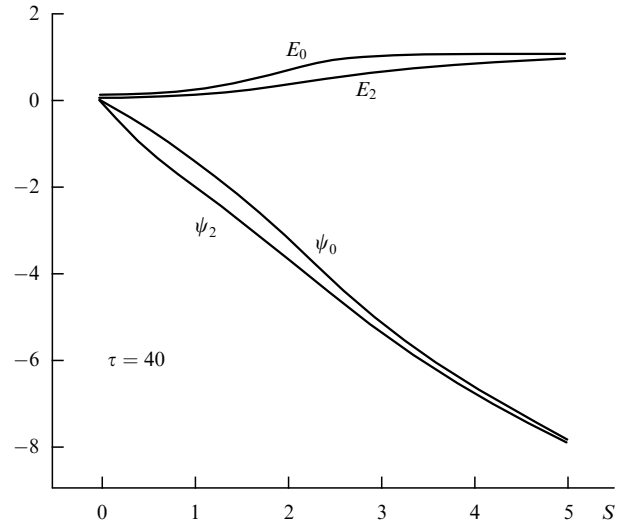


Рис. 14. Пространственное распределение амплитуд и фаз полей второй гармоники и статической поляризации.

Временная зависимость выходного сигнала второй гармоники на длине $S = 5$ показана на рис. 15. График приведен для разных значений затравочной волны второй гармоники: от слабой ($E_2(\tau, 0) = 0,05$) до очень сильной ($E_2(\tau, 0) = 1,2$). Виден быстрый рост амплитуды второй гармоники (который тем больше, чем больше интенсивность входящего сигнала) и более медленное последующее падение до начального значения. Картину генерации второй гармоники можно наблюдать на рис. 16. На трехмерном графике четко видны стадия приготовления состояния, где имеет место генерация, и асимптотическое (приготовленное) состояние, где $E_0(\tau, S) \rightarrow 1$, $E_2(\tau, S) \rightarrow 0$ при $\tau \rightarrow \infty$.

Итак, процесс генерации второй гармоники в световоде выключается при достижении равновесного состояния. Несмотря на то что имеется сильное статическое поле ($E_0(\tau, S) = 1$), обладающее условием фазового

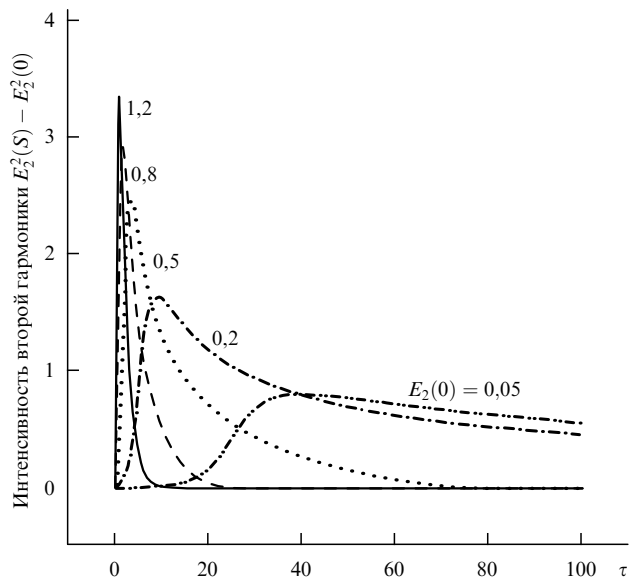


Рис. 15. Временная зависимость выходного сигнала второй гармоники для различных амплитуд входящего сигнала $E_2(0)$.

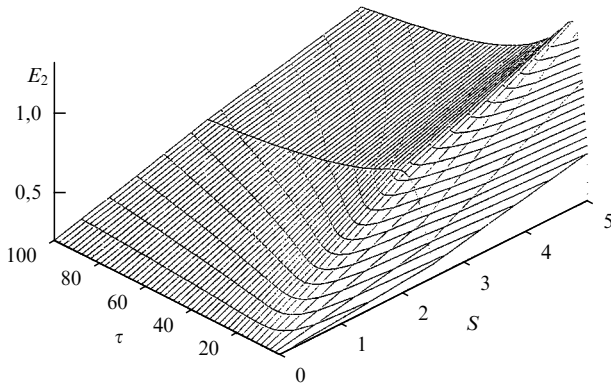


Рис. 16. Рост амплитуды поля второй гармоники E_2 на стадии приготовления и выключение генерации в полностью приготовленном состоянии для $E_2(0) = 0,2$, $E_0(0) = 0$, $\psi_0(0) = \psi_2(0) = 0$.

синхронизма $\kappa = k_{2\omega} - 2k_\omega$, генерация второй гармоники в стационарном состоянии отсутствует, что является примером деструктивной интерференции волн. Чтобы добиться генерации после ее самовыключения, необходимо нарушить установившееся равновесие, что можно сделать, изменив фазу затравочной волны второй гармоники или ее амплитуду. На рисунке 17 виден процесс самовыключения и активный всплеск генерации после изменения фазы затравочной волны. Аналогичный всплеск наблюдается и при изменении амплитуды.

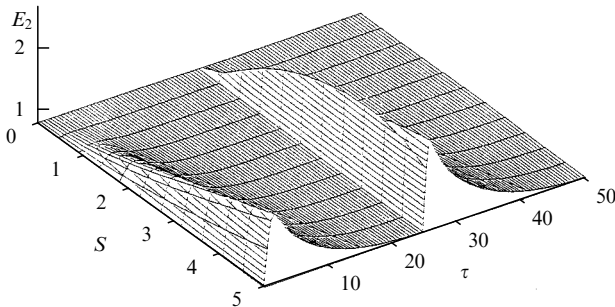


Рис. 17. Амплитуда сигнала второй гармоники для начальных условий $E_2(0, \tau) = 0,8$, $E_0(S, 0) = 0$, $\psi_0(0) = \psi_2(0) = 0$ и ее отклик на изменение фазы $\Delta\psi_2 = \pi$ при $\tau = 25$.

4.2. Высокоэффективная генерация второй гармоники

Обратимся к более общему случаю, не накладывая никаких ограничений на соотношения амплитуд первой и второй гармоник [26]. В этой ситуации мы уже не можем пренебрегать изменениями фундаментальной волны: в дополнение к рассмотренным в разделе 4.1 изменениям второй гармоники и статического поля мы должны исследовать изменение амплитуды и фазы первой гармоники.

Поля статической поляризации, первой и второй гармоник будем искать в виде

$$\begin{aligned} E_{dc}(z, t) &= -A_0(z, t) \exp[i(k_{2\omega} - 2k_\omega)z + i\psi_0(z)], \\ E_\omega(z, t) &= A_1(z) \exp[ik_\omega z - i\omega t + i\psi_1(z)], \\ E_{2\omega}(z, t) &= A_2(z) \exp[ik_{2\omega} z - 2i\omega t + i\psi_2(z)] \end{aligned} \quad (4.6)$$

соответственно. Подставляя выражения для первой и второй гармоник (4.6) в волновое уравнение (4.1), полу-

чаем уравнения для производных их комплексных амплитуд:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial z} A_1 [\exp(i\psi_1)] &= i \frac{2\pi\omega}{cn_\omega} P_\omega, \\ \frac{\partial}{\partial z} A_2 [\exp(i\psi_2)] &= i \frac{4\pi\omega}{cn_{2\omega}} P_{2\omega}. \end{aligned} \quad (4.7)$$

Дополним систему (4.7) уравнениями, описывающими отклик среды. Поляризации на основной и удвоенной частотах P_ω и $P_{2\omega}$ возникают вследствие $\chi^{(3)}$ -нелинейности при наличии сильного статического поля:

$$P_\omega = \chi^{(3)} E_{dc}^* E_\omega^* E_{2\omega}, \quad P_{2\omega} = \chi^{(3)} E_{dc} E_\omega^2.$$

Фундаментальная волна и вторая гармоника в результате выпрямления создают быструю нелинейную поляризацию

$$P_{dc}^{(0)} = \chi^{(3)} A_2 A_1^2 \exp[i(k_{2\omega} - 2k_\omega)z + i(\psi_2 - 2\psi_1)]$$

и соответствующее электрическое поле

$$E_{dc}^{(0)} = -4\pi q P_{dc}^{(0)},$$

которое является фазовосогласованным, но слабым по амплитуде.

Под действием накачки начальное затравочное поле усиливается посредством ЭПЗ и экспоненциально стремится (сохраняя фазовую память) к насыщению:

$$E_{dc} \rightarrow -u \exp[i(k_{2\omega} - 2k_\omega)z + i(\psi_2 - 2\psi_1)],$$

со скоростью $\alpha_2 A_2^2$, пропорциональной мощности накачки. Соответствующее уравнение для перехода поля статической поляризации E_{dc} к насыщению имеет вид

$$\frac{\partial}{\partial t} [A_0 \exp(i\psi_0)] = \alpha_2 A_2^2 [u \exp(i\psi_2) - A_0 \exp(i\psi_0)]. \quad (4.8)$$

Уравнение (4.8) для поля статической поляризации и система (4.7) для волн фундаментальной и удвоенной частоты образуют полную замкнутую систему, описывающую процесс распространения и взаимодействия волн в общем случае.

Как и в разделе 4.1, для дальнейшего исследования удобно ввести безразмерные переменные

$$\begin{aligned} E_0 &= \frac{A_0}{u}, \quad E_1 = \frac{\sqrt{n_\omega} A_1}{u}, \quad E_2 = \frac{\sqrt{n_{2\omega}} A_2}{u}, \\ S &= \kappa_0 z, \quad \kappa_0 = \frac{4\pi\omega\chi^{(3)} A_1^2}{cn_\omega \sqrt{n_{2\omega}}}, \quad \tau = \alpha_2 u^2 t. \end{aligned} \quad (4.9)$$

Разделение в (4.7) и (4.8) амплитуд и фаз приводит к универсальной системе уравнений, которая при $E_2/E_1 \ll 1$ переходит в (4.5):

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_2}{\partial S} &= E_0 E_1^2 \sin(\psi_0 + 2\psi_1 - \psi_2), \\ E_2 \frac{\partial \psi_2}{\partial S} &= -E_0 E_1^2 \cos(\psi_0 + 2\psi_1 - \psi_2), \\ \frac{\partial E_1}{\partial S} &= -E_0 E_1 E_2 \sin(\psi_0 + 2\psi_1 - \psi_2), \\ E_1 \frac{\partial \psi_1}{\partial S} &= -E_0 E_1 E_2 \cos(\psi_0 + 2\psi_1 - \psi_2), \\ \frac{\partial E_0}{\partial \tau} &= -E_2^2 [E_0 - \cos(\psi_0 + 2\psi_1 - \psi_2)], \\ E_0 \frac{\partial \psi_0}{\partial \tau} &= -E_2^2 \sin(\psi_0 + 2\psi_1 - \psi_2). \end{aligned} \quad (4.10)$$

Полученная система уравнений, как и (4.5), имеет стационарное решение:

$$E_0(\tau, S) = 1, \quad E_1(\tau, S) = E_1(0), \quad E_2(\tau, S) = E_2(0), \\ \psi_0 + 2\psi_1 - \psi_2 = 0,$$

где $E_1(0)$ и $E_2(0)$ — амплитуды поля входящего излучения, т.е. изменяются только фазы волн первой и второй гармоник, а генерация отсутствует.

Решение системы (4.10) численным методом для начальных условий

$$E_0(\tau, S) = 0, \quad E_1(0) = 1, \quad E_2(0) = 0,05, \\ \psi_0(S, 0) = \psi_1(0) = \psi_2(0) = 0,$$

соответствующих входной мощности фундаментальной волны 10^9 Вт/см² и второй гармоники 2×10^6 Вт/см², приведено на рис. 18. График показывает наличие эффективной генерации на стадии приготовления световода, рост амплитуды второй гармоники и переход к квазиравновесному состоянию. После пространственно-временных колебаний система переходит в полностью приготовленное состояние, в котором амплитуды волн не изменяются.

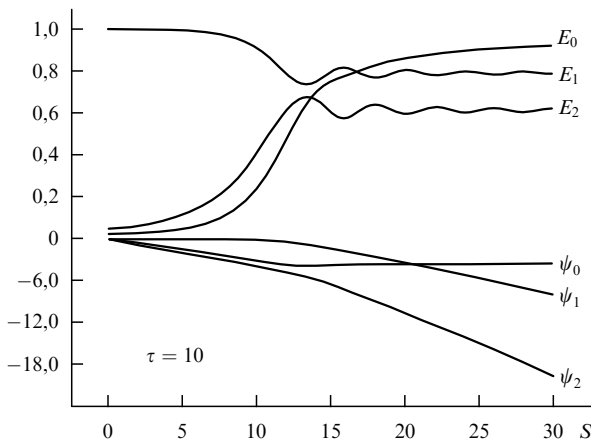


Рис. 18. Пространственная зависимость амплитуд и фаз.

Мы также исследовали зависимость эффективности удвоения частоты $f(S) = [E_2^2(S) - E_2^2(0)]/E_1^2(0)$ от времени. Поскольку мощность излучения в диспергирующей среде равна $cnA^2/4\pi$ (отметим фактор cn , а не c/n [19]), эффективность $f(S)$ есть отношение увеличения мощности второй гармоники к мощности падающей фундаментальной волны. Искомая зависимость для $S = 5$, $E_1(0) = 1$ и $E_2(0) = 0,3$ представлена нижней кривой на рис. 19, которая показывает рост и последующий спад эффективности генерации.

Эффективный и стабильный удвоитель частоты можно получить, изменяя должным образом входные параметры волны (амплитуду и/или фазу). Например, если монотонно изменять фазу падающей фундаментальной волны вращением угловой призмы с периодом T ($\psi_1(0) = 2\pi\tau/T$), эффективность становится постоянной и близкой к 100 %, как показано на рис. 19 для различных периодов T вращающейся угловой призмы. Изменение входных параметров луча предотвращает переход системы в стационарное (полностью приготовленное)

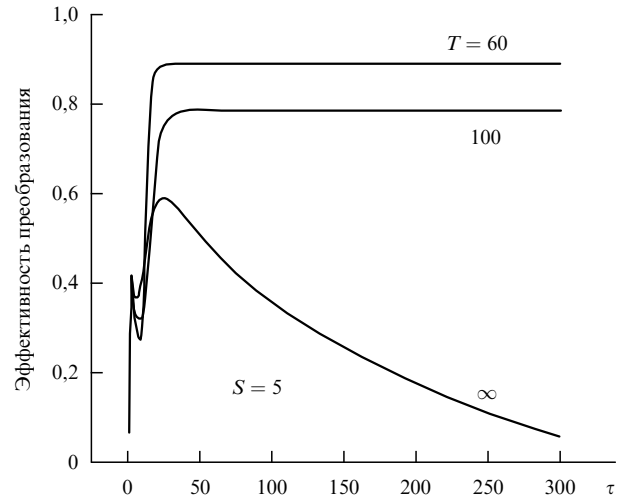


Рис. 19. Эффективность удвоения частоты для различных периодов T вращения угловой призмы.

состояние и связанное с ним самовыключение генерации. Полученный результат показывает, что, как и в случае удвоения частоты нелинейным кристаллом, принципиальные ограничения на эффективность преобразования отсутствуют (технические, конечно, всегда найдутся).

При исследовании перехода энергии от волны второй гармоники к фундаментальной (обратное преобразование), что случается, если амплитуда входящей второй гармоники превышает амплитуду первой, мы обнаружили поведение, схожее с прямым преобразованием, рассмотренным выше.

Таким образом, в данном разделе мы получили системы уравнений для амплитуд и фаз полей статической поляризации, первой и второй гармоник, описывающие процесс распространения волн в волоконном световоде, и нашли их решения. Уравнения дают согласующийся с экспериментом пространственно-временной масштаб и значения амплитуд полей, а также показывают, что генерация второй гармоники происходит на стадии приготовления благодаря запаздыванию в отклике системы (медленности процесса формирования статической поляризации). После завершения приготовления генерация самовыключается. Мы исследовали эффективность преобразования и предложили механизм создания эффективного удвоителя частоты. Представленная теория согласуется с известными экспериментальными результатами и предсказывает новые (см. также [25, 26]). Более детальное сравнение теоретических результатов с экспериментом является темой раздела 5.

5. Сравнение теории с экспериментом и результатами других моделей

Как уже отмечалось в разделе 4, полученные системы уравнений для амплитуд и фаз полей статической поляризации и волн первой и второй гармоник (4.5) и (4.10) дают нетривиальные масштабы величин: амплитуды статического электрического поля $u \approx 10^5$ В/см, длины насыщения $\chi_0^{-1} \approx 10$ см и характерного времени процесса $(\chi_2 u^2)^{-1} \approx 5$ мин, что полностью согласуется с экспериментальными данными [5, 8]. В эксперименте также наблюдается рост и самовыключение генерации, причем

в согласии с теорией скорость процесса возрастает с повышением мощности входящего излучения, а состояние, приготовленное с помощью предельно слабой второй гармоники [5], затухает очень медленно, так что выглядит как стационарное.

В экспериментах [27–29] исследовалась разность фаз волны второй гармоники, полученной в результате генерации и затравочной волны. Оказалось, что в тонком образце разность фаз равна $-\pi/2$ [25], в то время как в протяженном образце она равна -71° [28] и 99° [29].

Ответ на вопрос о значении искомой разности фаз дает анализ уравнения (4.2) с учетом направления поля возникающей статической поляризации. Подставим в формулу для амплитуды нелинейной поляризации на удвоенной частоте $P_{2\omega} = \chi^{(3)} E_{dc} E_\omega^2$ значение статического поля нелинейной поляризации. Как показано в разделе 4.1, статическое поле E_{dc} возникает благодаря усилению ЭПЗ затравочного поля и стремится к насыщению:

$$E_{dc} = -u \exp [i(k_{2\omega} - 2k_\omega)z + i\psi_2].$$

С учетом этого из (4.2) получаем

$$\frac{\partial}{\partial z} [A_2 \exp(i\psi_2)] = -i \frac{4\pi\omega\chi^{(3)} u A_1^2}{cn_{2\omega}} \exp(i\psi_2), \quad (5.1)$$

где A_1 — амплитуда поля фундаментальной волны.

Уравнение (5.1) имеет простое решение:

$$A_2(z) = A_2(0), \quad \psi_2(z) = -kz,$$

где

$$k = \frac{4\pi\omega\chi^{(3)} u A_1^2}{cn_{2\omega} A_2} \approx 10^{-1} \text{ см}.$$

При малой длине образца ($kz \ll 1$) комплексная амплитуда второй гармоники

$$\begin{aligned} E_{2\omega} &= A_2(z) \exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t - ikz) = \\ &= A_2(z) \exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t) [1 - ikz], \end{aligned}$$

т.е. вторая гармоника является суммой затравочной волны

$$A_2(z) \exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t)$$

и волны

$$\begin{aligned} -ikz A_2(z) \exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t) \equiv \\ \equiv kz A_2(z) \exp\left(i k_{2\omega} z - 2i\omega t - i\frac{\pi}{2}\right), \end{aligned}$$

полученной в результате генерации. Видно, что последняя имеет сдвиг фазы по отношению к затравочной волне $-\pi/2$, что согласуется с [25].

Принципиальное значение имеет знак "—" в правой части (5.1). Он появляется вследствие положительной обратной связи в отклике на внешнее поле (см. раздел 3). В случае же термодинамического отклика (возникающий дипольный момент среды направлен вдоль действующего поля) меняется знак в уравнении 5.1 и в сдвиге фазы. Отметим, что формула, аналогичная (5.1), была получена в [27], где знак "—" был введен для согласия с экспериментом. В волноводе произвольной длины волна, пропорциональная $\exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t - i\pi/2)$, инициирует волну, пропорциональную $\exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t - i\pi)$, и т.д.

Общее решение для поля второй гармоники можно представить как суперпозицию четырех волн, фазы которых сдвинуты на $-\pi/2$ относительно друг друга:

$$\begin{aligned} E_{2\omega} &= A_2(0) \exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t - ikz) = \\ &= A_2(0) \exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-ikz)^n}{n!} = \\ &= A_2(0) \exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t) \left[\left(1 + \frac{(kz)^4}{4!} + \frac{(kz)^8}{8!} + \dots \right) - \right. \\ &\quad \left. - i \left(kz + \frac{(kz)^5}{5!} + \frac{(kz)^9}{9!} + \dots \right) - \right. \\ &\quad \left. - \left(\frac{(kz)^2}{2!} + \frac{(kz)^6}{6!} + \frac{(kz)^{10}}{10!} + \dots \right) + \right. \\ &\quad \left. + i \left(\frac{(kz)^3}{3!} + \frac{(kz)^7}{7!} + \frac{(kz)^{11}}{11!} + \dots \right) \right] = \\ &= A_2(0) \exp(i k_{2\omega} z - 2i\omega t) \left[\frac{\cosh(kz) + \cos(kz)}{2} + \right. \\ &\quad \left. + \exp\left(-i\frac{\pi}{2}\right) \frac{\sinh(kz) + \sin(kz)}{2} + \right. \\ &\quad \left. + \exp(-i\pi) \frac{\cosh(kz) - \cos(kz)}{2} + \right. \\ &\quad \left. + \exp\left(-i\frac{3\pi}{2}\right) \frac{\sinh(kz) - \sin(kz)}{2} \right]. \end{aligned}$$

Соответствующие амплитуды меняются по длине волновода, и результирующая фаза волны второй гармоники в протяженном волноводе может иметь любой сдвиг по отношению к затравочной [28, 29].

В эксперименте [30] было показано наличие поля статической поляризации E_{dc} в образце и измерено его распределение по сечению образца (рис. 20). Вид этого распределения может быть легко получен в рамках представленной теоретической модели. Начальная нелинейная статическая поляризация образца описывается формулой $P_{dc}^{(0)} = \chi^{(3)} E_{2\omega} E_\omega^* E_\omega^*$ и является гауссианом вдоль поперечных координат, так как напряженности полей в лазерном пучке имеют гауссову форму. ЭПЗ под действием накачки усиливают поляризацию, оставляя, однако, неизменной ее форму: $P_{dc}^{(0)} \rightarrow P_{dc}$. Возникающее таким образом сильное статическое поле соответствует полю заряда, распределенного по сечению с плотностью

$$\rho = -\text{div } P_{dc} = -\frac{\partial}{\partial y} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{d^2}\right), \quad (5.2)$$

где d — поперечный размер пучка, т.е. E_{dc} соответствует полю диполя, размазанного в пространстве, что полностью согласуется с экспериментом [28].

Необходимо отметить, что расстояние между максимумами плотностей положительных и отрицательных зарядов $d \approx 10$ мкм, но оно соответствует только масштабу изменения P_{dc} , а электроны в среднем переносятся на микроскопические расстояния $r \ll d$. Формула (5.2) была получена методом фиттинга экспериментальных данных в [30]. Так как E_{dc} изменяет знак в вертикальном направлении, сдвиг пятна фокусировки излучения на стадии приготовления дает различный результат для разных направлений сдвига [31]. Если производить сдвиг в вертикальном направлении, то каждый участок образца, за исключением границ, поляризуется пооче-

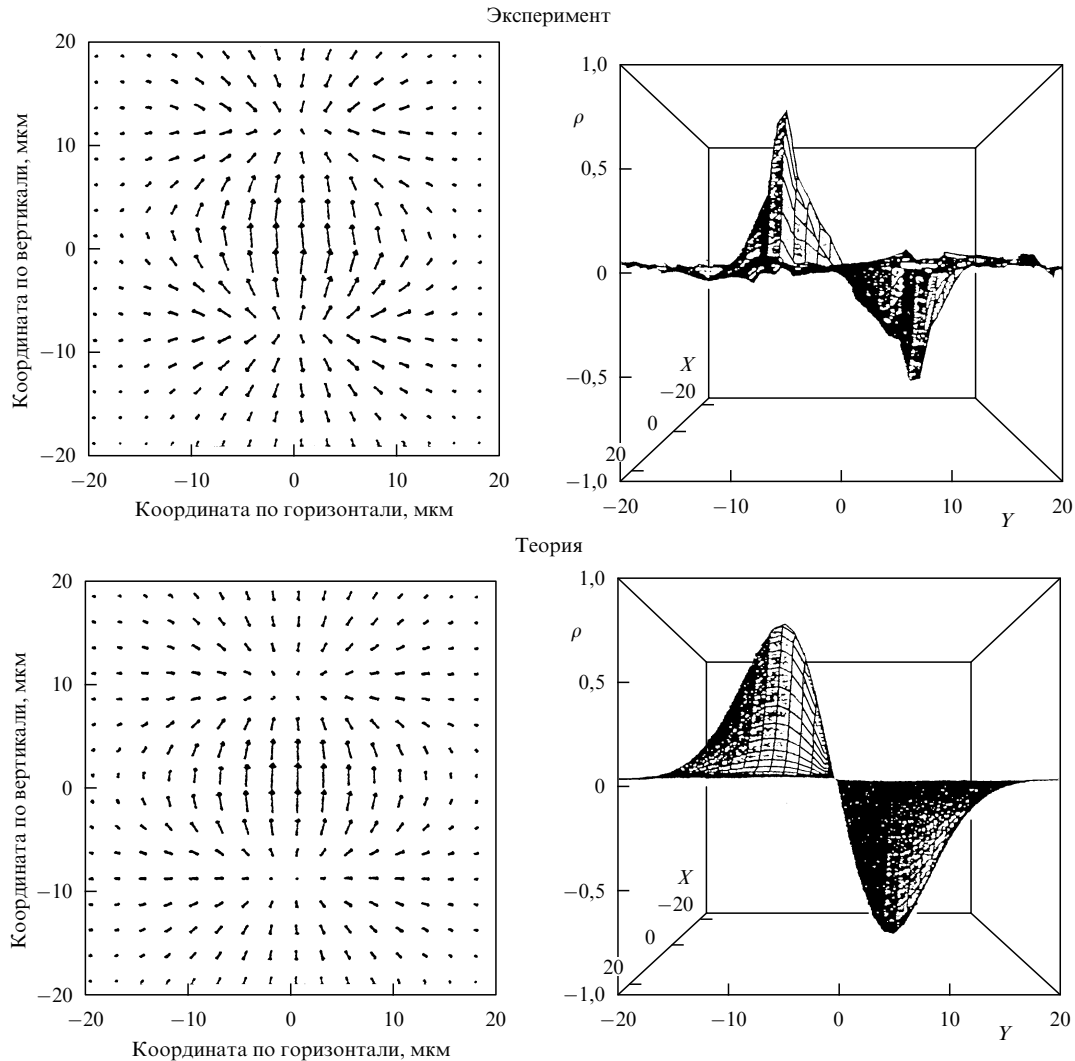


Рис. 20. Распределение статического поля в образце и соответствующее ему распределение заряда [30].

редно в противоположных направлениях и основной объем оказывается неприготовленным. Если же производить сдвиг в горизонтальном направлении, то переполаризация не происходит и образец оказывается приготовленным в полном объеме в соответствии с [31].

Наконец, в недавнем эксперименте [32] исследовалось влияние внешнего сильного статического поля E_{ext} на эффективность генерации. Было обнаружено, что после самовыключения генерации наложение сильного внешнего поля приводит к ее всплеску и последующему затуханию (рис. 21). И что совсем не тривиально, после повторного самовыключения генерации снятие внешнего поля приводит к новому всплеску генерации. Такое поведение находит объяснение в рамках нашей теоретической модели. Как уже отмечалось, процесс удвоения частоты возможен только на стадии перехода системы к равновесному состоянию и самовыключается, когда система его достигает. Любая "встряска" системы, будь то включение или выключение внешнего поля, выводит систему из равновесия, и процесс генерации возобновляется.

Исследуем процесс отклика системы на включение и выключение внешнего поля E_{ext} более детально. Сильное внешнее поле ($d_0 E_{\text{ext}} / \Delta \approx 100 \gg 1$) сдвигает энергетические уровни далеко от резонанса (см. формулу (3.1) и рис. 9) и Ге-центры становятся неактивными. Имеющееся поле затухает

вследствие рекомбинации электронов и дырок, усиление начального поля $E_{\text{dc}}^{(0)}$ прекращается. Кроме изменения E_{dc} , внешнее поле вносит дополнительную разность фаз между волнами первой и второй гармоник

$$\delta\psi = \frac{2\omega}{c} (\chi^{(3)}(\omega, 0, 0) - \chi^{(3)}(2\omega, 0, 0)) E_{\text{ext}}^2 z \equiv \xi S,$$

где $\xi \approx 6$ для экспериментальных значений $E_{\text{ext}} = 10^7$ В/см, $\chi^{(3)} = 10^{-14}$ СГС.

Мы нашли искомый отклик системы на сильное внешнее поле с помощью системы (4.5), считая, что в момент включения E_{ext} начинается экспоненциальный спад амплитуды поля поляризации: $E_0(\tau, S) = E_0(S) \exp(-\eta\tau)$, и возникает дополнительная разность фаз $\delta\psi = \xi S$. Было обнаружено, что в полном согласии с экспериментом как включение, так и выключение сильного внешнего поля E_{ext} приводят к всплеску сигнала второй гармоники (рис. 22).

Таким образом, выводы теоретической модели полностью соответствуют имеющимся экспериментальным данным. Теория также предсказывает новые интересные результаты, например возможность создания стабильного высокоэффективного удвоителя частоты (см. раздел 4.2).

Был предложен ряд других теорий, сыгравших свою роль в описании самоорганизации возбуждений в силикатных волоконных световодах [9–12, 33]. К сожалению, все

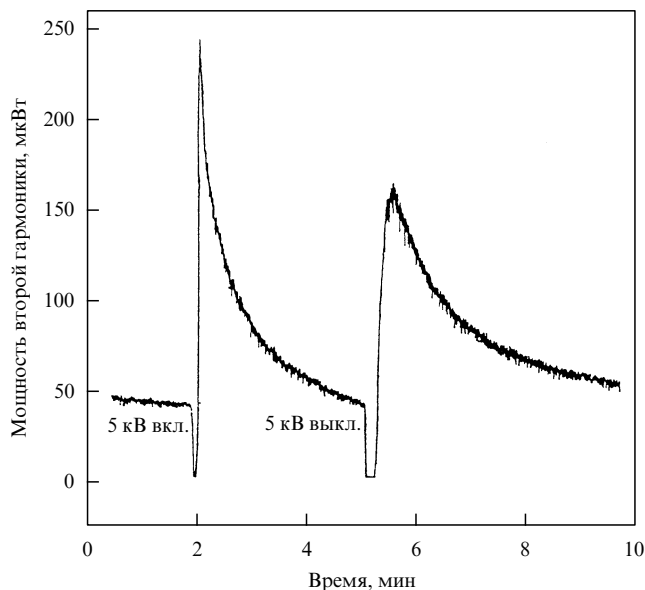


Рис. 21. Всплеск генерации второй гармоники при включении и выключении внешнего электрического поля E_{ext} (эксперимент [32]).

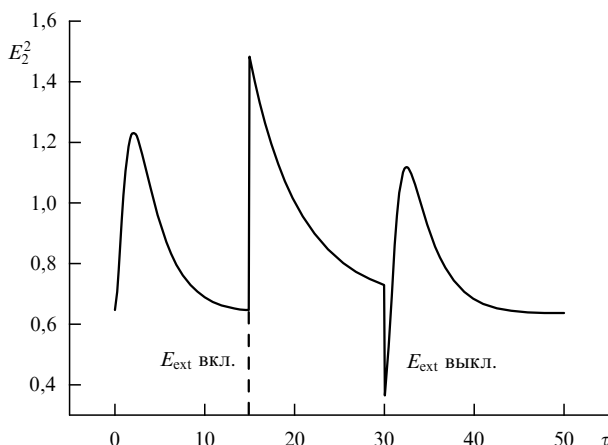


Рис. 22. Влияние сильного внешнего поля E_{ext} на интенсивность выходящего сигнала второй гармоники для $E_2(0) = 0,8$, $\delta\varphi = 6S$, $\eta = 0,15$ (теория).

они остановились лишь на стадии построения отклика системы (построения материальных соотношений), описание же экспериментов оставалось лишь на качественном уровне.

Во всех теориях, кроме нашей, используется многофотонное поглощение квантов первой и второй гармоник: в [9–12] — комбинация квантов ω и 2ω , приводящая к генерации свободных электронных и дырочных состояний в стеклах, в [33] — локальные электронные состояния, возбуждаемые четвертой гармоникой 4ω . В нашей теории фигурируют только локальные электронные и дырочные состояния и лишь одноквантовые процессы (поглощение одного кванта второй гармоники).

Линейные и нелинейные процессы легко различить экспериментально. В нашей теории затравочное статическое поле E_0 создается выпрямлением полей первой и второй гармоник: $E_0 \propto E_{2\omega}^2 E_\omega$. Оно важно лишь на начальной стадии развития неустойчивости. После начала формирования упорядоченного состояния статическое поле E_0 может быть выключено (выключением одного из световых

полей), а процесс формирования будет, конечно, продолжаться (детали см. в [25]).

В теориях [9–12] ток $J \propto E_{2\omega}^2 E_\omega$, формирующий состояние, существует лишь при одновременном действии первой и второй гармоник в течение всего процесса и исчезает при выключении одного из полей (приготовление состояния прекращается). Это обстоятельство позволяет экспериментально выяснить, какой механизм реализуется в силикатных стеклах. Ответ на этот вопрос был дан в недавнем эксперименте [34, 35].

Первая и вторая гармоники импульсного Nd:YAG-лазера фокусировались в силикатную пластину ПМ-4 (стекло К-8), записывалась долгоживущая решетка, амплитуда которой контролировалась по дифракции и эффективности генерации второй гармоники. Приготовление состояния начиналось двумя волнами: фундаментальной ω и второй гармоникой 2ω ; затем одна из них перекрывалась. При этом было обнаружено, что одна волна (фундаментальная или вторая гармоника) продолжает приготовление состояния. В случае, когда вводится только фундаментальная волна, интерпретация не столь ясна, так как решетка удваивает частоту ω и обе волны ω и 2ω действуют на образец.

Интерпретация эксперимента со второй гармоникой очевидна. Две волны начинают приготовление решетки с волновым вектором $\mathbf{K} = \mathbf{k}_{2\omega} - 2\mathbf{k}_\omega$ (утверждение справедливо во всех теориях [9–12, 15, 23, 24]). В нашей теории \mathbf{K} — волновой вектор выпрямленного электрического поля $E_0 = -4\pi q\chi^{(3)} E_{2\omega}^2 E_\omega^*$, начальное поле E_0 усиливается одной волной, тогда как в [9–12] только одновременное действие двух волн готовит состояние. Согласно эксперименту при выключении фундаментальной волны вторая гармоника продолжает запись, как показано на рис. 23, взятом из [34, 35].

Независимо от способа приготовления достигается одна и та же амплитуда решетки, однако уровень насыщения при действии двух волн выше, поэтому верхняя кривая падает. Если в образец вводится волна 2ω , решетка не генерирует

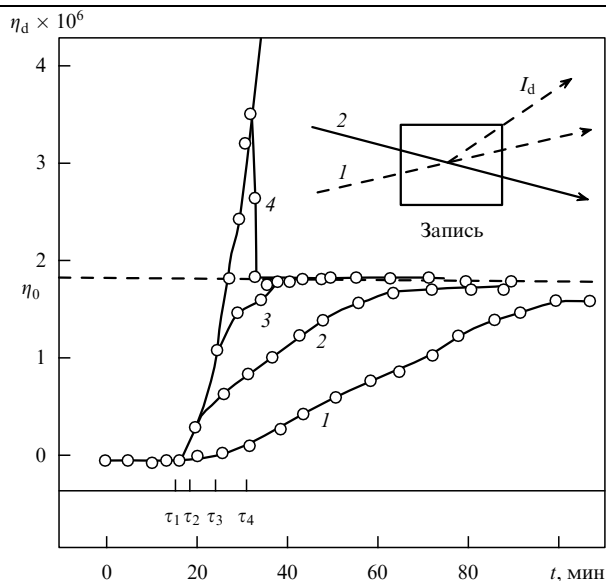


Рис. 23. Зависимость эффективности дифракции фундаментальной волны от времени для различных длительностей приготовления двумя волнами: $\tau_1 = 16$ мин, $\tau_2 = 20$ мин, $\tau_3 = 25$ мин, $\tau_4 = 32$ мин. Кривые 1–4 соответствуют указанным значениям τ_i (эксперимент [34, 35]).

волну ω . Возможная 4ω -гармоника, согласно [9–12], может в принципе записывать другую решетку с волновым вектором $\mathbf{K}^* = \mathbf{k}_{4\omega} - 2\mathbf{k}_{2\omega}$, но не решетку \mathbf{K} . К тому же волна 4ω сильно поглощается в силикатном стекле и поэтому вряд ли играет существенную роль. Таким образом, приведенные на рис. 23 результаты показывают, что в силикатном стекле реализуется наша модель, а не модель [9–12, 33].

6. Заключение

Проведенные эксперименты и анализ экспериментальных данных [15–17] дают основание сделать вывод, что при добавлении примесей GeO_2 в силикатном волоконном световоде возникает новый тип возбуждений — экситон с переносом заряда. Поглощая один квант зеленого света, электрон переходит с примесного Ge-центра в матрицу или на другой Ge-центр. ЭПЗ локализован в пространстве и имеет статический дипольный момент; в силу пространственной разделенности электрона и дырки такой тип возбуждений является долгоживущим. На базе ЭПЗ разработана оригинальная теоретическая модель, описывающая генерацию второй гармоники в германосиликатных волоконных световодах.

Представленные выше результаты показывают, что благодаря взаимодействию дипольных моментов в системе ЭПЗ возникает самоорганизация (ориентационное упорядочивание дипольных моментов). При этом в ответ на слабое затравочное электрическое поле в системе образуется положительная обратная связь: ЭПЗ возбуждаются так, что их дипольные моменты направлены преимущественно против поля и возникающая поляризация усиливает это поле. Система выходит на насыщение, когда амплитуда возникающего сильного статического поля достигает значения $10^5 - 10^7$ В/см. Такое поле нарушает изначально существующую в объеме световода симметрию инверсии и делает возможной эффективную генерацию второй гармоники.

Изучение распространения волн в германосиликатном световоде с учетом их взаимодействия с ЭПЗ позволило получить системы уравнений для амплитуд и фаз полей статической поляризации, первой и второй гармоник и найти их решения. Уравнения полностью описывают процесс распространения волн в волоконном световоде. Генерация второй гармоники происходит на стадии приготовления благодаря запаздыванию в отклике системы (медленности процесса формирования статической поляризации). После завершения приготовления генерация самовыключается.

Вычисление пространственного и временного масштабов самоорганизации позволило найти фазовые соотношения между возникающей волной второй гармоники и

затравочной волной и распределение образующегося статического поля по сечению. Как включение, так и выключение внешнего электрического поля приводят к всплеску генерации второй гармоники.

Изложенная выше теория согласуется с известными экспериментальными результатами и предсказывает новые. Она дает возможность создания высокоэффективного удвоителя частоты и чисто оптического полинга (наведения поляризации) стекол.

Работа поддержана грантами Министерства науки и технической политики РФ (№ 08.02.16) и Российского фонда фундаментальных исследований (№ 00-02-16051).

Список литературы

1. Zaikin A N, Zhabotinskii A M *Nature* **225** 535 (1970)
2. Benard H *Rev. Gen. Sci. Pures Appl.* **12** 1261 (1900)
3. Turing A M *Philos. Trans. Roy. Soc. B* **237** 37 (1952)
4. Arecchi F T *Physica D* **86** 297 (1995)
5. Osterberg U, Margulis W *Opt. Lett.* **11** 516 (1986)
6. Fujii Y et al. *Opt. Lett.* **5** 48 (1980)
7. Podobedov V B *J. Raman Spectrosc.* **27** 731 (1996)
8. Stolen Q H, Tom H W K *Opt. Lett.* **12** 585 (1987)
9. Дианов Е М, Казанский П Г, Степанов Д Ю *Квант. электрон.* **16** 887 (1989)
10. Dianov E M, Starodubov D S *Opt. Fiber Technol.* **1** (1) 3 (1994)
11. Baranova N B, Chudinov A N, Zel'dovich B Ya *Opt. Commun.* **79** 116 (1990)
12. Anderson D Z, Mizrahi V, Sipe J E *Opt. Lett.* **16** 796 (1991)
13. Антонюк Б П *ФТТ* **28** 3624 (1986)
14. Neustruev V B et al. *Fiber Integrated Opt.* **8** 143 (1989)
15. Antonyuk B P et al. *Phys. Lett. A* **213** 297 (1996)
16. Антонюк Б П, Денисов В Н, Маврин Б Н *Письма в ЖЭТФ* **68** 737 (1998)
17. Antonyuk B P, Antonyuk V B, Frolov A A *Opt. Commun.* **174** 427 (2000)
18. Dianov E M et al. *Opt. Lett.* **22** 221 (1997)
19. Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Электродинамика сплошных сред* (М.: Наука, 1982)
20. Antonyuk B P, Antonyuk V B *Phys. Lett. A* **249** 113 (1998)
21. Antonyuk B P, Antonyuk V B *J. Mod. Opt.* (2000) to be published
22. Abakumov V N, Perel V I, Yassievich I N *Nonradiative Recombination in Semiconductors* (Modern Problems in Condensed Matter Sciences, Vol. 33, Eds V M Agranovich, A A Maradudin) (Amsterdam: North-Holland, 1991)
23. Antonyuk B P, Musichenko S F *Phys. Scripta* **58** 83 (1998)
24. Antonyuk B P *Opt. Commun.* **181** 191 (2000)
25. Antonyuk B P, Antonyuk V B *J. Mod. Opt.* **45** 257 (1998)
26. Antonyuk B P, Antonyuk V B *Opt. Commun.* **147** 143 (1998)
27. Dominic V, Lambelet P, Feinberg J *Opt. Lett.* **20** 444 (1995)
28. Lambelet P, Feinberg J *Opt. Lett.* **21** 925 (1996)
29. Margulis W, Carvalho C S, von der Weid J P *Opt. Lett.* **14** 700 (1989)
30. Dominic V, Feinberg J J. *Opt. Soc. Am. B* **11** 2016 (1994)
31. Dianov E M et al. *Sov. Lightwave Commun.* **2** 83 (1992)
32. Kazansky P G, Pruneri V *Phys. Rev. Lett.* **78** 2956 (1997)
33. Lesche B J. *Opt. Soc. Am. B* **7** 53 (1990)
34. Balakirev M K *Phys. Vibrations* **6** 233 (1998)
35. Balakirev M K, Vostrikova L I, Smirnov V A *Письма в ЖЭТФ* **66** 771 (1997)

Self-organization in germanium silicate fibers and its role in second harmonic generation

B.P. Antonyuk, V.B. Antonyuk

Institute of Spectroscopy, Russian Academy of Sciences,

142092 Troitsk, Moscow Region, Russian Federation

Tel. (7-095) 334-02 38. Fax (7-095) 334-08 86

E-mail: antonyuk@isan.troitsk.ru; vadimant@isan.troitsk.ru

Based on Raman and hyper-Raman experiments and on direct green-light absorption measurements, excitations of a new type — charge transfer excitons — are found to exist in silicate fibers with addition of GeO_2 , whose self-organization (orientational ordering of dipole moments) leads to positive feedback on a static electric field. The strong electric field of 10^5 V/cm that results breaks the initial inversion symmetry and allows the second harmonic to be generated, which exists only at the medium preparation stage and switches off when a transition to the stationary state takes place.

PACS numbers: 42.81 Qb, 61.43 Fs, 72.20 Jv

Bibliography — 35 references

Received 20 September 2000, revised 11 October 2000