

# Электрострикционный механизм образования брэгговской решетки в германосиликатных световодах

В.Б.Неуструев

*Предложена электрострикционная модель фоторефрактивного эффекта, проявляющегося при записи брэгговских решеток в германосиликатных световодах. Электрострикция обусловлена пространственно-периодической решеткой зарядов, возникающей в процессе УФ экспозиции. По нашей оценке, в реальных условиях записи вклад электрострикции в фоторефрактивный эффект сопоставим со вкладом центров окраски и более чем на порядок превышает вклад электрооптического эффекта. Электрострикционная модель объясняет образование брэгговской решетки типа ПА в световодах с большим содержанием германия в сердцевине и ряд других ранее необъясненных явлений.*

**Ключевые слова:** волоконный световод, решетка показателя преломления, перенос заряда, электрострикция.

## 1. Состояние проблемы

Самоорганизующееся периодическое стабильное изменение показателя преломления вдоль оси волоконного световода  $\Delta n(z)$  впервые было обнаружено в германосиликатных световодах при продолжительном воздействии лазерного излучения [1]. После создания метода голографической записи решетки показателя преломления (РПП) лазерным УФ излучением [2] внутриволоконные РПП нашли широкое применение в современных волоконно-оптических системах и приборах в качестве узкополосных зеркал и фильтров. Впечатляющим результатом применения брэгговских РПП является создание семейства эффективных волоконных лазеров и ВКР-конверторов. Германосиликатные волоконные световоды до сих пор остаются предпочтительной средой для записи брэгговских решеток и для изучения фоторефрактивного эффекта. Однако имеющиеся результаты пока не дают ясного представления о механизмах образования РПП, что ограничивает возможности изготовления и применения брэгговских решеток.

Брэгговские РПП подразделяются на решетки трех типов: РПП типа I («типичные»), РПП типа II, образованные в результате локального плавления, и РПП типа ПА, имеющие N-образную зависимость изменения  $\Delta n$  от экспозиции (однократную осцилляцию). Образование брэгговской решетки инициируется фотоиндуцированным преобразованием германиевых кислорододефицитных центров (Ge-КДЦ) лазерным УФ излучением. Обсуждается несколько механизмов фоторефрактивного эффекта:

1) структурные изменения стекла (уплотнение, изменение термоупругих напряжений) [3, 4], которые вносят наибольший вклад в  $\Delta n$  (более  $10^{-3}$ );

2) рост показателя преломления вследствие роста

наведенного поглощения (механизм центров окраски) [2, 5]:  $\Delta n = 10^{-4}$  в области 1.5 мкм определяется соотношением Крамерса – Кронига;

3) пространственное разделение зарядов, приводящее к увеличению поляризуемости вследствие электрооптического эффекта [6].

Модель пространственно-периодического разделения зарядов [6] предполагает фотоионизацию дефектов и образование аксиально-периодического электрического поля с периодом  $\sim 0.5$  мкм, в котором возможна модуляция показателя преломления с амплитудой  $\Delta n \sim 10^{-6}$  вследствие эффекта Поккельса. Однако максимальный эффект ( $\Delta n \approx 10^{-5}$ ) ожидается при действии эффекта Керра в случае разделения зарядов на расстояние  $\sim 1$  нм при расстоянии между случайно распределенными диполями несколько нанометров [7].

Пространственно-периодическое разделение зарядов в последующих работах не обсуждалось из-за его малости. Изменения  $\Delta n$  вследствие других механизмов коррелируют с интенсивностью возбуждения, поэтому максимумы показателя преломления  $n(z)$  в брэгговской решетке должны совпадать с максимумами записывающей интерференционной картины. Эти механизмы образуют пространственно совпадающие (сфазированные) субрешетки  $\Delta n$ . Исключением является частный случай модели релаксации термоупругих напряжений (иначе – модели рельефа напряжений) [4], когда может образоваться субрешетка, находящаяся в противофазе с другими субрешетками.

Конкуренция механизмов (N-образная зависимость амплитуды модуляции  $\Delta n$  от экспозиции) впервые была обнаружена в световодах с высокой концентрацией GeO<sub>2</sub> [8]. Решетки, полученные в таких условиях, были выделены в особый тип ПА. Было предложено несколько феноменологических моделей образования решетки типа ПА [9], смысл которых заключался в последовательном образовании дефектов двух типов (или взаимодействии двух процессов), вызывающих изменения  $n$  разного знака. В начале экспозиции образуются дефекты типа А, ведущие к увеличению амплитуды  $\Delta n$  и усредненного  $\langle n \rangle$  (образуется РПП типа I). Дефекты типа А по мере на-

Научный центр волоконной оптики при Институте общей физики РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: neu.fo.gpi.ru; web-site: <http://www.forc.gpi.ru>

Поступила в редакцию 28 июня 2001 г.

копления преобразуются в дефекты типа В, вызывающие более сильный фотопреломительный эффект противоположного знака (образование РПП типа ПА).

Утвердилось мнение, что РПП типа I и ПА пространственно противофазны, однако это не вполне согласуется с экспериментом. Минимум в N-образной зависимости  $\Delta n$  не достигает нуля, а иногда проявляется в виде слабой осцилляции на довольно монотонной зависимости. Это значит, что осцилляция  $\Delta n$  обусловлена конкуренцией пространственно-несфазированных субрешеток; такое возможно, если одна из них связана с пространственно-периодической решеткой зарядов. Однако при этом возникает вопрос о механизме и амплитуде эффекта.

Для объяснения данного явления нами был предложен электроэстрикционный механизм фотопреломительного эффекта, обусловленного пространственно-периодической решеткой зарядов [10]. В настоящей работе более детально обосновывается эта модель и делаются количественные оценки эффекта.

## 2. Пространственно-периодическая решетка зарядов

Для записи брэгговской решетки на резонансную волну  $\lambda_B$  формируют поле интерферирующих лазерных пучков с периодом  $\Lambda = \lambda_B/2n_{eff}$ , где  $n_{eff}$  – эффективный показатель преломления для световодной моды; для длины волны  $\lambda = 1.5$  мкм период  $\Lambda \approx 0.5$  мкм. Разделение зарядов происходит в результате диффузии фотоэлектронов из более освещенной области в менее освещенную на расстояние менее  $\Lambda/2 \approx 0.25$  мкм в обе стороны от максимума интерференционной полосы.

Донорами фотоэлектронов в германосиликатном стекле являются Ge-КДЦ, некоторые фотоиндуцированные дефекты, а также сама матрица в случае многофотонного возбуждения. Для образования стабильной решетки зарядов необходимы стабильные ловушки электронов. Ими являются известные парамагнитные центры Ge(1), образующиеся в результате захвата электронов на четырехкоординированных атомах германия. В типич-

ных условиях записи РПП может образоваться до  $10^{18}$  см<sup>-3</sup> Ge(1)-центров. Такие центры, имеющие полосу поглощения на 4.4 эВ с полушириной  $\sim 1$  эВ, могут отдавать электрон при возбуждении в эту полосу и при повторном возбуждении мигрировать в менее освещенную область. Кроме того, в германосиликатном стекле существуют более многочисленные неидентифицированные ловушки [11, 12]. Разделение зарядов будет продолжаться до тех пор, пока дрейфовый ток в электрическом поле зарядов не скомпенсирует диффузионный ток или пока не истощатся доноры или акцепторы фотоэлектронов.

На рис.1 дана схема разделения зарядов. Согласно существующему представлению, положительные заряды на фотоионизованных донорах электронов (Ge-КДЦ)<sup>+</sup> неподвижны. В процессе рекомбинации части фотоэлектронов не возвращаются на исходные доноры, о чем свидетельствует рост наведенного поглощения с экспозицией. После релаксации возбуждения в максимуме интерференционной полосы образуется избыточный положительный заряд. Избыточный отрицательный заряд создает симметричные максимумы на периферии каждой интерференционной полосы. Многократное импульсное или продолжительное непрерывное возбуждение приведет к стационарному распределению избыточных зарядов.

Насыщение  $\Delta n$  обычно происходит после экспозиции  $\sim 10$  кДж/см<sup>2</sup>, тогда как наведенное поглощение насыщается при экспозиции  $\sim 100$  Дж/см<sup>2</sup> (например, излучением с  $\lambda = 248$  нм). Поскольку изменение наведенного поглощения является индикатором переноса зарядов, то решетка зарядов может возникнуть в начале записи РПП. Решетка зарядов является периодической структурой, в которой диаметр заряженного слоя, равный диаметру сердцевины световода 3–8 мкм, много больше расстояния между слоями ( $\sim 0.25$  мкм). Это позволяет использовать модель плоского конденсатора для оценки напряженности электрического поля и пренебречь механической реакцией оболочки световода на деформацию сердцевины.

## 3. Электроэстрикция

Направление электрического поля в решетке зарядов периодически меняется вдоль оси световода в максимумах избыточного заряда, где напряженность поля  $E_d = 0$ . В результате электроэстрикции максимальное сжатие сердцевины будет в области максимального  $E_d$ , тогда как в области  $E_d = 0$  по законам упругости будет растяжение. Таким образом, решетка зарядов создает упругую периодическую деформацию объема сердцевины ( $V - V_0$ )/ $V = \Delta V/V = AE_d^2$ , модуляцию плотности и показателя преломления  $n(z)$  ( $\Delta V/V$  – относительное изменение объема;  $A$  – коэффициент электроэстрикции).

Для оценки максимальной напряженности поля в модели плоского конденсатора предполагаем, что эффективные избыточные заряды сосредоточены на некотором эффективном расстоянии друг от друга, а расчетное поле  $E_d$  (однородное по допущению) соответствует максимальному полю в промежутке между заряженными слоями. В действительности естественно ожидать плавных распределений избыточных зарядов и, соответственно, напряженности поля вдоль оси световода, которые будут создавать плавное изменение показателя преломления. Поскольку электроэстрикция – макроскопиче-

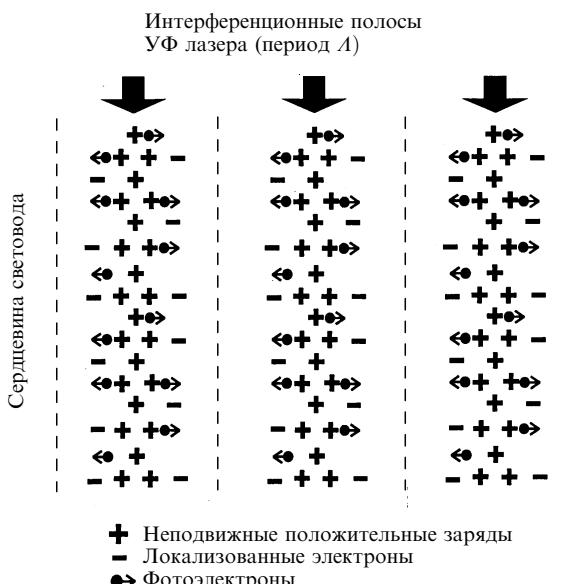


Рис.1. Схема разделения зарядов в сердцевине волоконного световода.

ский эффект, то предлагаемая модель приемлема, если эффективное расстояние составляет не менее 20–30 нм.

Для такой модели согласно [13]

$$A = \left[ \beta(\varepsilon - 1)\varepsilon^{-1} - \frac{d\varepsilon}{dp}\varepsilon^{-2} \right] / 8\pi, \quad (1)$$

где  $\varepsilon$  – диэлектрическая постоянная;  $\beta$  – изотермическая сжимаемость среды;  $p$  – давление, создаваемое электрострикцией. Второй член в (1) соответствует вкладу фотоупругости. Реально фотоупругость и электрострикция дают суммарный вклад в изменение  $n$ . Поскольку нас интересует изменение  $n$ , обусловленное изменением объема образца под действием поля, то нет необходимости в разделении этих эффектов. Таким образом, коэффициент электрострикции представим в виде

$$A_c \approx \frac{\beta(\varepsilon - 1)}{8\pi\varepsilon}. \quad (2)$$

Для оценки коэффициента электрострикции были использованы константы кварцевого стекла, которое не сильно отличается от германосиликатного стекла:

$$\beta = \frac{3(1 - 2\mu)}{E} = 2.9 \cdot 10^{-12} \text{ ед. СГСЭ}, \quad (3)$$

где  $E$  – модуль Юнга;  $\mu$  – коэффициент Пуассона кварцевого стекла. Используя  $\varepsilon = 3.77$ , получаем  $A_c \approx 8.5 \times 10^{-14}$  ед. СГСЭ. Учитывая, что

$$\frac{d\varepsilon}{dp} = 2n \frac{dn}{dp}, \quad n = 1.46 \quad \text{и} \quad \frac{dn}{dp} = 1.0 \cdot 10^{-12} \text{ ед. СГСЭ} [14],$$

легко убедиться, что в формуле (1) вклад фотоупругости составляет лишь 1/10 часть суммарного эффекта.

В реальных РПП амплитуда модуляции  $\Delta n \approx 10^{-4}$ . Изменение  $n$  связано с изменением объема соотношением

$$\frac{\Delta n}{n} \approx -\frac{1}{3} \frac{\Delta V}{V}. \quad (4)$$

Чтобы получить  $\Delta n = 10^{-4}$  за счет электрострикции, электрическое поле  $E_d$  должно быть равным  $4.8 \cdot 10^4$  ед. СГСЭ =  $1.5 \cdot 10^7$  В/см. Это значение в несколько раз ниже порога пробоя и в этом смысле принципиально возможно. Для тонких заряженных слоев в геометрии интерференционных полос

$$E_d = 4\pi\sigma, \quad \sigma = N_e \cdot 4.80 \cdot 10^{-10} \text{ ед. СГСЭ}, \quad (5)$$

где  $\sigma$  – объемная плотность заряда;  $N_e$  – концентрация электронов в слое на периферии интерференционной полосы. Для создания  $E_d = 1.5 \cdot 10^7$  В/см необходимо  $N_e = 7.6 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$ . Это пренебрежимо малая концентрация по сравнению с концентрацией ловушек электронов.

Концентрация Ge-КДЦ приблизительно пропорциональна концентрации  $\text{GeO}_2$  и при  $[\text{GeO}_2] = 10\%$  примерно равна  $10^{19} \text{ см}^{-3}$ . В процессе записи РПП разрушается около половины Ge-КДЦ. Соответствующая концентрация электронов  $\sim 5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$  локализуется на некотором расстоянии от своих доноров, т. е. так или

иначе участвует в фотопереносе. Таким образом, перенос заряда не лимитирован числом доноров и ловушек, однако интенсивность излучения в интерференционной полосе должна обеспечить концентрацию фотоэлектронов, значительно большую, чем  $7.6 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$ , чтобы создать условия для возникновения диффузационного тока.

Для оценки концентрации фотоэлектронов во время записи РПП были использованы результаты работы [15], в которой приведены все необходимые параметры световода и лазерного излучения. В [15] сообщалось о записи одним лазерным импульсом с  $\lambda = 248$  нм, энергией 20 мДж и длительностью 20 нс брэгговских решеток с  $\Delta n \approx 10^{-5}$ , термостабильность которых была значительно ниже стабильности наведенного поглощения и структурных изменений. Мы предполагаем, что эти решетки  $\Delta n$  обусловлены пространственно-периодической решеткой зарядов с локализацией электронов на сравнительно мелких ловушках [10]. Уместно заметить, что к таким ловушкам можно отнести и Ge(1)-центры, поскольку их термостабильность значительно ниже термостабильности типичных РПП ( $\sim 200^\circ\text{C}$  против  $\sim 350 - 400^\circ\text{C}$  при одинаковых условиях измерения).

В [15] был использован одномодовый световод с молекулярной концентрацией  $\text{GeO}_2$  в сердцевине 15 %. Пучок фокусировался цилиндрической оптикой и имел среднюю плотность энергии 450 мДж/см<sup>2</sup>. Концентрацию фотоэлектронов можно оценить, полагая, что квантовый выход освобождения электронов равен начальной эффективности распада Ge-КДЦ, которая приблизительно составляет 0.1 [11, 12]. С учетом геометрических факторов за импульс поглощалось  $8.5 \cdot 10^{13}$  квантов (в среднем на длине РПП) и высвобождалось  $8.5 \cdot 10^{12}$  электронов, что соответствует средней концентрации электронов в сердцевине  $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$  и их удвоенной (по меньшей мере) концентрации в интерференционных полосах  $N_0 = 10^{16} \text{ см}^{-3}$ . Для модуляции  $n$  с амплитудой  $\Delta n = 10^{-5}$  за счет электрострикции необходима избыточная концентрация электронов  $2.8 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$ , т. е. перенос 0.03 % фотоэлектронов за импульс на расстояние, соизмеримое с  $\Lambda/2$ . Реальная длина пробега фотоэлектронов за время возбуждения и рекомбинации нам не известна.

Использованная в [15] плотность энергии приблизительно в 3 раза больше обычной. При типичных условиях записи можно ожидать, что концентрация фотоэлектронов составит  $\sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$ . По-видимому, этого достаточно для создания избыточной концентрации электронов  $10^{12} - 10^{13} \text{ см}^{-3}$  в процессе многократного импульсного возбуждения.

На рис.2 схематически показаны распределения избыточных зарядов и напряженности поля (пересечение оси  $z$  соответствует изменению направления) относительно распределения интенсивности записывающего излучения, которые иллюстрируют важные особенности электрострикционной субрешетки  $\Delta n(z)$ : пространственный сдвиг относительно записывающего излучения и явно выраженную пространственную гармонику.

Согласно известным свойствам германосиликатного стекла [11], с ростом концентрации  $\text{GeO}_2$  будет увеличиваться не только число доноров и ловушек электронов, но и концентрация фотоэлектронов при выбранных условиях экспозиции. Вклад электрострикционного механизма в  $\Delta n$  должен расти сверхлинейно с ростом концентрации  $\text{GeO}_2$ . Это объясняет N-образную динамику записи РПП в световодах с высоким содержанием  $\text{GeO}_2$ :

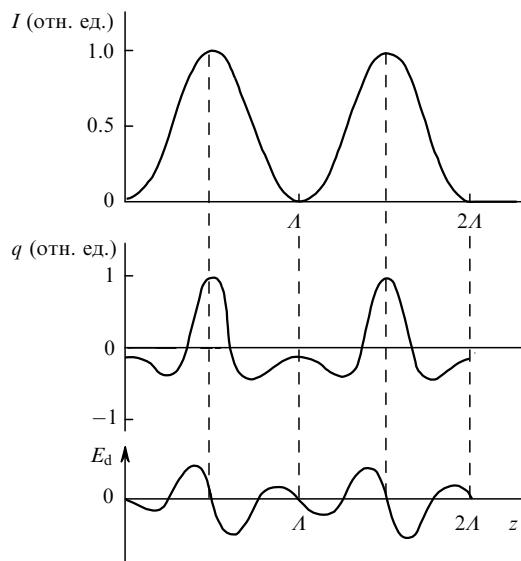


Рис.2. Диаграмма распределения избыточных зарядов  $q$  и напряженности электрического поля  $E_d$  вдоль оси световода относительно распределения интенсивности УФ излучения  $I$ .

сначала РПП образуется по электрострикционному механизму, затем проявляется вклад других субрешеток, синхронизированных с интенсивностью возбуждения.

Вернемся еще раз к работе [15]. С увеличением энергии одиночных импульсов выше 30 мДж ее авторы наблюдали резкое увеличение амплитуды модуляции  $\Delta n$  и при энергии импульса 40 мДж была получена рельефная решетка с  $\Delta n = 0.006$ , термостабильная до 800 °C. По оценке авторов, локальная температура при записи решетки могла достигать нескольких тысяч градусов. Был сделан вывод о локальном плавлении как о причине образования рельефной решетки. Такая решетка, в отличие от «типовых», впервые была отнесена в [15] к типу II.

Эта интерпретация, по нашему мнению, не вполне согласуется с наблюдением нестабильной решетки при энергии импульса 20 мДж, когда локальная температура также должна превышать 1000 °C. Можно предложить другое объяснение, основанное на электрострикционной модели. При энергии 20 и 40 мДж РПП обусловлена решеткой зарядов с той лишь разницей, что при большей энергии импульса происходит электрический пробой, приводящий к изменению структуры стекла. В пользу этого предположения говорят сверхлинейная зависимость эффективности фотоионизации от интенсивности импульса и пороговый характер явления, отмеченный авторами [15].

#### 4. Выводы

Полученные оценки показали принципиальную возможность электрострикционного механизма образования брагговской РПП с  $\Delta n = 10^{-4}$ . При типичных условиях экспозиции для этого необходим макроперенос менее чем 0.1 % фотоэлектронов от имеющихся во время экспозиции.

Фоторефрактивный эффект, обусловленный электрострикцией, пространственно не совпадает с другими механизмами. Электрострикционный механизм должен преобладать в начале экспозиции и его вклад должен увеличиваться с ростом концентрации  $GeO_2$ . Динамика образования РПП типа II в световодах с высоким содержанием  $GeO_2$  предположительно обусловлена конкуренцией электрострикционного механизма со структурной перестройкой.

Решетка зарядов наряду с основным периодом  $\Lambda$  должна иметь выраженную (предположительно первую) пространственную гармонику. Электрострикционный механизм в конкретном световоде может проявляться или не проявляться в динамике  $\Delta n$  в зависимости от интенсивности излучения.

Автор искренне благодарен Е.М.Дианову, А.С.Бирюкову и В.О.Соколову (НЦВО) за содержательное обсуждение работы и ценные замечания. Работа частично поддержана РФФИ (проект № 01-02-17751) и ФЦП «Интеграция» (проект 2.1-811/A0081).

1. Hill K.O., Fujii Y., Johnson D.C., Kawasaki B.S. *Appl.Phys.Letts*, **32**, 647 (1978).
2. Meltz G., Morey W.W. *Proc.SPIE*, **1516**, 185 (1991).
3. Poumellec B., Guénot P., Riant I. et al. *Opt.Mater.*, **4**, 441 (1995).
4. Sceats M.G., Atkins G.R., Pool S.B. *Annu.Rev.Mat.Sci.*, **23**, 381 (1993).
5. Dong L., Archambault J.-L., Russell P.St.J., Payne D.N. *Proc.Conf.on Optical Commun.*, ECOC'94 (Firenze, Italy, 1994, v.2, p.997).
6. Payne F.P. *Electron.Letts*, **25**, 498 (1989).
7. Bernardin J.P., Lawandy N.M. *Optics Comms*, **79**, 194 (1990).
8. Xie W.X., Niay P., Bernage P. et al. *Optics Comms*, **104**, 185 (1993).
9. Dong P., Liu W.F., Reekie L. *Proc.SPIE*, **2998**, 49 (1997); *Optics Letts*, **21**, 2032 (1996).
10. Dianov E.M., Neustruev V.B. *Proc.SPIE*, **4083**, 132 (2000).
11. Neustruev V.B. *J.Phys.Cond.Mat.*, **6**, 6901 (1994).
12. Neustruev V.B., Dianov E.M., Kim V.M. et al. *Fiber Integr. Optics*, **8**, 142 (1989).
13. Ландau Л.Д., Лифшиц Е.М. *Электродинамика сплошных сред* (М., Наука, 1982, с.79).
14. Мазурин О.В., Стрельцина М.В., Швайко-Швайковская Т.П. В кн. *Свойства стекол и стеклообразующих расплавов* (Л., Наука, 1973, т.1, с.76).
15. Archambault J.-L., Reekie L., Russel P.St.J. *Electron.Letts*, **29**, 453 (1993).