

УФ лазерно-индуцированный ток в германосиликатных волоконных световодах со встроенными электродами

А.О.Рыбалтовский*, **В.Н.Баграташвили****, **П.В.Чернов***, **П.Г.Казанский*****,
В.Прунери***, **С.И.Цыпина****, **Ю.С.Заворотный***

Исследована природа фототоков в германосиликатных одномодовых световодах со встроенными электродами. Показано, что под действием импульсов эксимерного KrF-лазера при напряженностях электрического поля до 1.6 МВ/см имеют место, во-первых, образование и перемещение зарядов в сердцевине световода и, во-вторых, инжекция фотоэлектронов из металлических электродов в оболочку световода. Оба эффекта способствуют протеканию электрического тока через образец. Установлено, каким образом на фототок влияют напряженность электрического поля, плотность энергии в лазерном импульсе, температура волокна, а также наличие примеси водорода в сердцевине световода.

Ключевые слова: одномодовый световод, германиевый кислородно-дефицитный центр, электрическое поле, лазерное излучение, фототок.

1. Введение

Генерация и разделение зарядов в кварцевых стеклах и волоконных световодах под действием УФ лазерного излучения активно исследуются в связи с важными применениями этих эффектов в оптоэлектронике. Прежде всего, они лежат в основе создания решеток квадратичной нелинейной восприимчивости $\chi^{(2)}$ в стекле и позволяют повысить эффективность ГВГ лазерного излучения в одномодовых световодах из германосиликатного стекла [1]. Кроме того, фотоионизация германиевых кислородно-дефицитных центров (ГКДЦ) в германосиликатном стекле (ГСС) является одним из доминирующих механизмов его светочувствительности – явления, используемого для записи решеток показателя преломления [2]. Управление переносом электронов во внешнем электрическом поле позволяет повысить светочувствительность волоконных световодов [3, 4]. И, наконец, рассматривается применение этих явлений для создания волоконных электрооптических модуляторов [5], а также новой простой методики автокорреляционных измерений длительности УФ фемтосекундных импульсов [6].

Исследованию механизмов фотоиндуцированной генерации и разделения зарядов в чистом кварцевом и германосиликатном стеклах посвящены работы [7–12]. Основные экспериментальные данные в них были получены при регистрации фотопроводимости и люминесценции [7–9], а также при измерении спектров поглощения и спектров ЭПР [10] центров, взаимодействующих с УФ излучением. Такими центрами в ГСС являются ГКДЦ, двухквантовая ионизация которых под действием излу-

чения KrF-лазера во внешнем электрическом поле [9] вызывает токи смещения. При этом фотопроводимость стекла может быть весьма высокой, сравнимой с проводимостью полупроводников. Кроме того, как показано в [9], основными ловушками для электронов являются сами ионизованные ГКДЦ, а также электроотрицательный ион Ge^{4+} . Все эти исследования проводились с объемными и пленочными образцами и при электрических полях менее 10 кВ/см.

В последние годы достигнут значительный прогресс в технологии создания волоконных световодов со встроенными электродами (ВСВЭ) [3, 5, 11]. Такие световоды дают возможность создавать сильное (вплоть до 10 МВ/см) электрическое поле вдоль протяженного оптического пути. Использование ВСВЭ позволяет проводить исследование фотоиндуцированных процессов (в частности, генерации и разделения зарядов) непосредственно в оптических световодах.

В настоящей работе впервые исследуется механизм генерации фототоков в одномодовых германосиликатных ВСВЭ при облучении последних мощными импульсами KrF-лазера в условиях сильного внешнего электрического поля (до 1.6 МВ/см). Рассмотрено влияние на фототок процессы температуры ВСВЭ, интенсивности УФ излучения, а также наличия в сердцевине световода молекулярного водорода.

2. Методика исследований и образцы

Излучение KrF-лазера направлялось на боковую поверхность одномодового световода, очищенного от полимерного покрытия (рис. 1). Длина облучаемого участка составляла 0.5–3 см. Световод с сердцевиной из ГСС (внешний диаметр световода – 125 мкм, диаметр сердцевины – 3 мкм, молярное содержание GeO_2 – 18%) имел два полых канала диаметром 50 мкм, в которые свободно помещались электроды из покрытой золотом вольфрамовой проволоки диаметром 25 мкм. Минимальное расстояние d между стенками каналов составляло 10 мкм.

*НИИ ядерной физики им. Д.В.Скобельцына при МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119899 Москва, Воробьевы горы

**Институт проблем лазерных и информационных технологий РАН, Россия, 14219 Троицк Моск. обл., Пионерская ул., 2

***Optoelectronic Research Center, University of Southampton, Southampton, S017 1BJ, UK

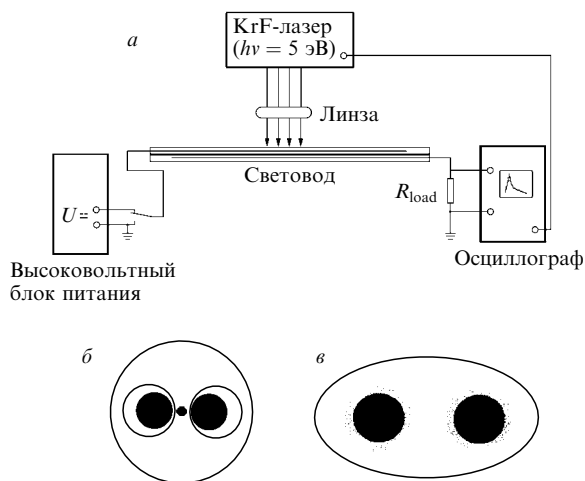


Рис.1. Схема установки для электрометрических измерений на волоконных световодах (а) и схематические изображения поперечного сечения германосиликатного одномодового (б) и кварцевого (в) ВСВЭ.

Отражающая оболочка световода была изготовлена из «сухого» плавленного кварца с содержанием ОН-групп на уровне 50 ppm.

Подключение электродов к высоковольтному источнику питания осуществлялось с разных концов световода во избежание пробоя по воздуху. Поле, создаваемое электродами ВСВЭ, неоднородно по сечению образца, однако, имея в виду соотношение диаметра электродов и расстояния между ними, в сердцевине данного ВСВЭ поле можно считать однородным и оценивать как $E = U/d$. Максимальная напряженность электрического поля E в световоде достигала 1.6 МВ/см и ограничивалась электрическим пробоем в момент УФ облучения.

В ряде экспериментов использовались волокна с внешним диаметром около 400 мкм, синтезированные из чистого кварцевого стекла. Эти волокна имели два вплавленных электрода из никелевой проволоки диаметром 100 мкм, расположенных на расстоянии 120–150 мкм друг от друга (рис.1, в).

Сигналы фототока, индуцированные в световоде УФ лазерными импульсами, регистрировались на запоминающем цифровом осциллографе С9-8. Одновременно имелась возможность наблюдать сигнал триплетной фотолуминесценции от ГКДЦ с максимумом в области 400 нм [9]. Для этого один торец световода через соответствующий фильтр пристыковывался к ФЭУ-100.

Исследуемый образец через токоизмерительный резистор R_{load} (10–100 кОм) подсоединялся к источнику постоянного напряжения (рис.1). В момент лазерного импульса осциллограф, нагруженный на сопротивление R_{load} , регистрировал экспоненциальный импульс с амплитудой U и характерной длительностью τ . Величина τ определялась постоянной времени измерительных цепей и значительно превышала длительность τ_L лазерного импульса (20 нс), а также время жизни носителей в кварцевом стекле и ГСС. Амплитуда импульса U пересчитывалась в усредненный за импульс ток I как $I = \tau U / R_{load} \tau_L$.

Для удобства анализа протекающих в межэлектродном пространстве процессов при каждой напряженности поля E , температуре образца и плотности энергии УФ излучения Φ проводилась серия последовательных импульсов облучения образца ($N = 10 - 100$ импульсов) и

затем такая же серия при $E = 0$. (Источник напряжения заменялся проводником.) Полученные серии обозначим далее $I_{for}^{(N)}$ и $I_{rev}^{(N)}$ соответственно. Чтобы исключить влияние изменения концентрации ГКДЦ в процессе лазерного излучения на величину фототокового сигнала, исследуемый участок световода предварительно подвергался воздействию нескольких десятков лазерных импульсов без наложения электрического поля. В течение этого облучения происходил распад большей части фоточувствительных ГКДЦ [9, 13].

Вольт-амперные характеристики (ВАХ) в виде $I_{for}^{(1)}(E)$ и $I_{rev}^{(1)}(E)$ измерялись при температурах $-140, 20, 130$ и 300°C . Для измерения ВАХ при температурах ниже комнатной образец помещался в специальную кювету, охлаждаемую жидким азотом. Для нагрева ВСВЭ до температур выше комнатной использовался конвективный поток горячего воздуха.

В экспериментах по влиянию молекулярного водорода, введенного в сетку стекла, на процессы генерации фототока использовались ВСВЭ, которые были выдержаны в атмосфере водорода при давлении 60 атм и температуре 20°C в течение двух недель. Это обеспечивало концентрацию молекул H_2 в сердцевине на уровне $7 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ [14].

3. Результаты и их обсуждение

В исследованных образцах одномодовых ВСВЭ при импульсном УФ лазерном облучении генерируются импульсы фототока, амплитуда которых зависит от приложенного напряжения U , плотности энергии в лазерном импульсе Φ , температуры образца T и числа лазерных импульсов N .

При плотности энергии в лазерном импульсе $\Phi = 150$ мДж/см², напряженности внешнего электрического поля $E = 1.36$ МВ/см, сопротивлении нагрузки $R_{load} = 100$ кОм и длительности импульса $\tau = 17$ мкс, определяемой параметрами регистрирующей аппаратуры, типичный заряд q составлял ~ 10 пКл, а усредненный ток I был равен ~ 500 мкА. Согласно нашим предыдущим исследованиям [9], основной вклад в сигнал фототока дают электроны, образовавшиеся в результате ионизации ГКДЦ в сердцевине световода и движущиеся во внешнем электрическом поле.

3.1. Эффект экранировки и эмиссионный ток

Как показали эксперименты, по мере облучения световода лазерными импульсами амплитуда импульсов фототока падает для всех значений напряженности приложенного электрического поля. Это является следствием экранирования внешнего электрического поля наведенным внутренним полем, что связано с микроскопическим разделением зарядов и их локализацией на границе сердцевина – оболочка [9]. На рис.2 этот ток, являющийся током смещения, обозначен как A_1 . Отметим, что при $T = 300 \text{ K}$, $\Phi = 150$ мДж/см² и $E = 616$ кВ/см это снижение составляет не более 50% амплитуды первого импульса $I_{for}^{(1)}$, т.е. экранирование не является полным, в отличие от данных работы [9], где для объемных образцов стекла наблюдалось полное экранирование внешнего поля. На рис.2 фототок насыщения последовательности $I_{for}^{(N)}$ обозначен как B .

Мы заметили также, что $I_{for}^{(1)} - B = I_{rev}^{(1)}$ практически для всех E и Φ . Таким образом, в общий сигнал фототока

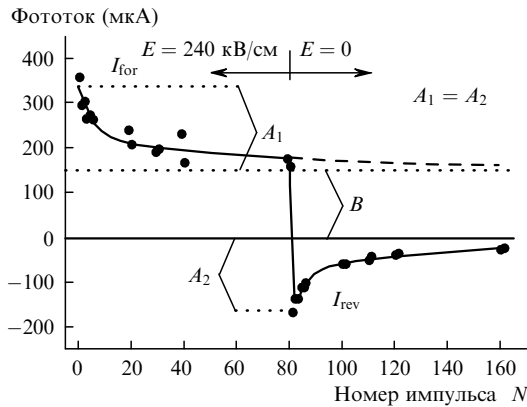


Рис.2. Характерный вид зависимости импульсного фототока от номера лазерного импульса.

$I_{\text{for}}^{(N)}(E)$ для исследуемых световодов входит, кроме тока смещения A_1 , некая постоянная составляющая $B(E)$. Эта составляющая по сути является «транзитным током», т. е. не может быть объяснена с точки зрения токов смещения.

Относительный вклад транзитного тока, т. е. величина $B/(A_1 + B)$, сильно зависит от температуры образца. Так, для $T = -140^\circ\text{C}$ и $E = 0.75 \text{ МВ/см}$ к двадцатому импульсу облучения фототок падает практически до нуля. При температурах образца выше комнатной транзитная составляющая фототока, наоборот, сильно возрастает. Кроме того, как следует из полученных данных, относительный вклад транзитного тока повышается с ростом напряженности поля E и увеличением плотности энергии лазерных импульсов Φ . Транзитный ток связан, на наш взгляд, с фотоэмиссией электронов при попадании излучения на металлические электроды.

Вопрос о вкладе эмиссионного тока в общий фототок уже обсуждался в [8] для планарных волноводов из кварцевого стекла с высоким содержанием германия и фосфора. Грубая оценка эмиссионного заряда, проведенная по формуле $q = \eta\Phi S/h\nu$ (η – эффективность эмиссии фотоэлектронов на один поглощенный квант, составляющая для многих металлов при энергии кванта, близкой к работе выхода $h\nu_0$, примерно 10^{-4} [15], $S = 10^{-3} \text{ см}^2$ – облучаемая площадь и $\Phi = 150 \text{ мДж/см}^2$), дает 3 нКл. Эта оценка является завышенной, поскольку она относится, во-первых, к току насыщения, когда собираются все электроны, а во-вторых, к случаю эмиссии электронов в вакуум. В нашем же случае эмиссия осуществляется из золотых электродов в кварцевое стекло.

Для выяснения роли эмиссионной компоненты тока нами был проведен ряд экспериментов по измерению зависимостей $I_{\text{for}}^{(N)}$ на толстых волокнах и объемных образцах стекла, что позволяло облучать стекло, практически не задевая электроды. В результате было установлено, что в случае такой засветки вклад транзитного тока существенно снижается, в то время как токи смещения A_1 и A_2 остаются неизменными. Это вполне подтверждает эмиссионную природу транзитного тока.

На рис.3,а представлены ВАХ $I_{\text{for}}^{(1)}(E)$ и $I_{\text{rev}}^{(1)}(E)$ фототока в ВСВЭ. Как можно заметить, при достаточно больших напряженностях электрического поля кривая $I_{\text{for}}^{(1)}(E)$ имеет участок со сверхлинейной зависимостью. В соответствии с представлениями [16] надлинейный (квадратичный) характер зависимости ВАХ реализуется в случае, когда заряды из электродов инжектируются в ди-

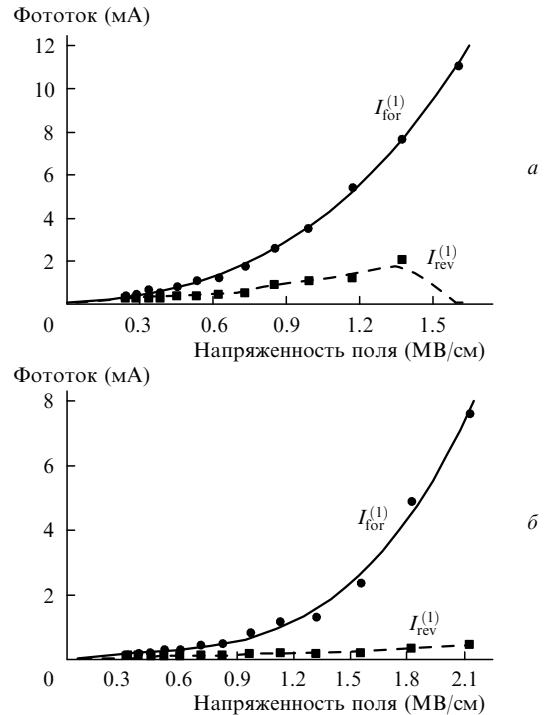


Рис.3. Вольт-амперные характеристики прямого и обратного фототока при локализации поля в сердцевине (а) и в оболочке (б) ВСВЭ.

электрик и при этом нарушается его электронейтральность. В нашем случае можно говорить об инжекции фотоэмиссионных электронов из золотых электродов в чистое кварцевое стекло оболочки ВСВЭ под действием УФ излучения.

Качественно это подтверждается результатами следующего эксперимента. ВСВЭ возбуждался не через боковую поверхность, а через торец. Оба проволочных электрода соединялись вместе и находились под одним потенциалом, что исключало участие в фототочковых процессах носителей заряда, образующихся в сердцевине ВСВЭ. Снаружи, на расстоянии 2 см от засвечиваемого торца, наносился второй кольцевой электрод из олова. Внешний оловянный электрод экранировался от УФ излучения специальной диафрагмой. На рис.3,б представлены ВАХ, полученные в такой экспериментальной схеме. Видно, что кривая $I_{\text{for}}^{(1)}(E)$ имеет хорошо выраженный участок с зависимостью, близкой к квадратичной. Таким образом, экспериментально полученные для прямого тока зависимости $I_{\text{for}}^{(1)}(E)$ и последовательности $I_{\text{for}}^{(N)}$ характеризуют не только движение носителей заряда в сердцевине ВСВЭ, но и эмиссионные токи с электродов.

3.2. Влияние температуры

Кривые на рис.4 демонстрируют некоторые особенности формирования наведенного в сердцевине ВСВЭ заряда при различных температурах облучаемого образца. В первую очередь, это наличие максимума тока смещения $I_{\text{rev}}^{(1)}$ при $T = 130^\circ\text{C}$ (рис.4,а). Ток $I_{\text{rev}}^{(1)}$ в этом случае оказывается в 1.5–2 раза выше, чем при комнатной температуре. При $T = 300^\circ\text{C}$ ток $I_{\text{rev}}^{(1)}$ (а следовательно, и экранирующее внутреннее поле) существенно уменьшается, что может быть объяснено, в первую очередь, температурным ускорением процессов рекомбинации разделенных зарядов. При этой температуре наблюдалось также уменьшение в несколько раз общего сигнала прямого фототока.

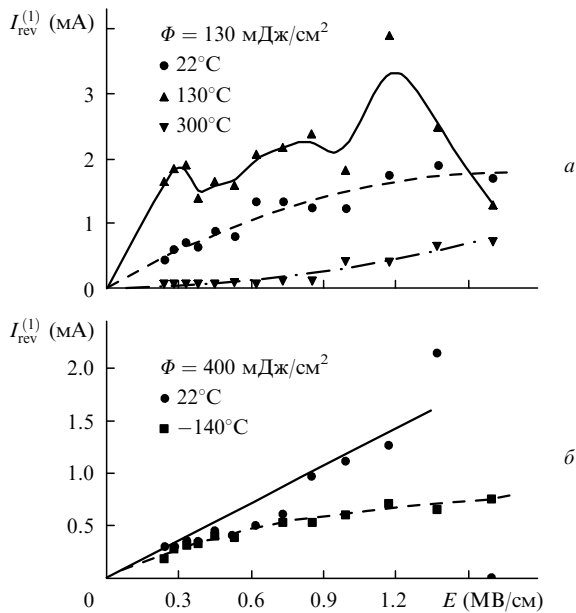


Рис.4. Амплитуда наведенного заряда в зависимости от напряженности электрического поля при $\Phi = 130$ (а) и 400 мДж/см² (б) и разных температурах облучаемого световода.

Отметим, что согласно [11] в кварцевых стеклах, нагретых до таких температур, осуществляется процесс термополинга – перемещения зарядов в электрическом поле. В результате термополинга происходит компенсация внешнего поля в межэлектродном промежутке, что в свою очередь должно привести к наблюдавшемуся нами уменьшению сигнала фототока.

Кроме того, мы прямо зафиксировали появление термически наведенного поля в световодах, нагретых до 300 – 500°C при напряженности приложенного поля 1.0 – 1.4 МВ/см, и измерили его величину. Регистрация происходила следующим образом: после термополинга световод охлаждался до комнатной температуры, затем источник напряжения заменялся проводником и с помощью УФ лазера индуцировалась последовательность $I_{\text{therm}}^{(N)}$ импульсов обратного тока, которая мало отличалась от последовательности импульсов $I_{\text{rev}}^{(N)}$ фототока, полученного при фотополинге при том же напряжении на электродах.

Что же касается низкотемпературных измерений, то, как следует из сравнения кривых на рис.4,б, амплитуда импульсов фототока от наведенного заряда при $T = -140^\circ\text{C}$ в целом оказывается меньше, чем в экспериментах при комнатной температуре. С понижением температуры, по-видимому, увеличивается вероятность захвата электронов на промежуточных ловушках и, как следствие, уменьшается их длина пробега. Следует отметить, что с понижением температуры облучаемого световода до температуры жидкого азота сигнал фототока $I_{\text{for}}^{(1)}$ в образце падает практически до нуля, т. е. с понижением температуры, по-видимому, уменьшается вклад и от эмиссионного тока.

3.3. Влияние водорода

В световодах, предварительно насыщенных молекулярным водородом, формирование наведенного заряда и его релаксация под действием УФ излучения происходят в условиях, когда в сетке $\text{SiO}_2:\text{GeO}_2$ одновременно протекают фотохимические реакции с участием молекул

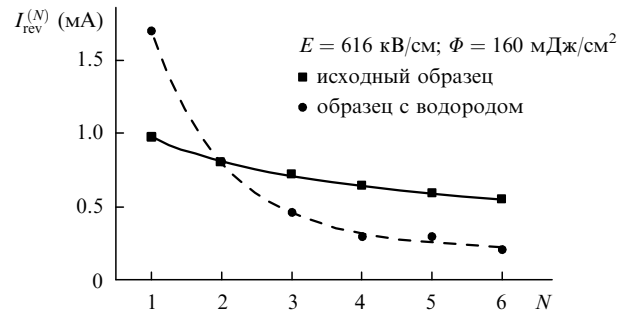


Рис.5. УФ лазерно-индуцированная релаксация наведенного заряда в исходном образце и образце с водородом при $E = 616$ кВ/см и $\Phi = 160$ мДж/см².

H_2 . Как известно [13, 17], фотоиндуцированные реакции молекул H_2 с центрами окраски могут сильно менять дефектный состав стекла, приводя к фотохимическому встраиванию атомов водорода в его сетку и к появлению дефектов типа $\equiv\text{Si}-\text{OH}$, $\equiv\text{Ge}-\text{OH}$. На рис.5 представлены зависимости $I_{\text{rev}}^{(N)}$ в исходных образцах и образцах, насыщенных водородом. Можно заметить два явных различия: в водородсодержащих образцах наблюдается, во-первых, рост сигнала $I_{\text{rev}}^{(1)}$ фототока и, во-вторых, явное ускорение релаксации наведенного заряда в нулевом внешнем поле при импульсном УФ возбуждении.

Полученные результаты можно объяснить следующим образом. Под действием УФ излучения в сетке германосиликатного стекла с участием молекул H_2 происходят такие фотохимические реакции, в результате которых водород «застраивает» дефекты, являющиеся потенциальными ловушками электронов. В этом случае возрастает длина пробега электронов в стекле и, как следствие, увеличивается фотопроводимость ГСС. В результате возрастает перемещаемый за импульс заряд и соответственно ускоряется релаксация наведенного заряда. Увеличение длины пробега электронов и времени их жизни после возбуждения в кварцевом стекле с повышенным содержанием гидроксильных групп $\equiv\text{Si}-\text{OH}$ отмечалось авторами работы [18]. Эти результаты трактовались как следствие уменьшения концентрации электронных ловушек за счет модификации их водородом в сетке SiO_2 .

4. Заключение

Проведенное в настоящей работе экспериментальное исследование УФ лазерно-индуцированной генерации фототоков в германосиликатных световодах со встроенными электродами в сильном внешнем электрическом поле позволило установить следующие основные особенности этого процесса. При УФ облучении ВСВЭ прежде всего происходит генерация свободных электронов в сердцевине световода за счет ионизации ГКДЦ и макроскопическое разделение зарядов с их возможной локализацией на границе сердцевина–оболочка, что приводит к экранированию внешнего электрического поля внутренним полем от разделенных зарядов.

Кроме того, имеет место инжекция фотоэлектронов из проволочных электродов в чистое кварцевое стекло оболочки световода. С ростом напряженности электрического поля и плотности энергии в лазерном импульсе растет вклад от эмиссионной составляющей в общий сигнал фототока.

В процессах разделения носителей заряда существенную роль играют ловушки электронов. Эффективность захвата УФ индуцированных электронов на ловушках зависит от температуры облучаемого ВСВЭ, а также от химического состава стекла его сердцевины. Модификация ловушек электронов, вызванная их застройкой молекулами водорода, приводит к росту сигнала фототока и ускорению процесса релаксации УФ лазерно-индуцированного заряда во внутреннем поле. Уменьшение температуры образца ниже комнатной способствует быстрому захвату электрона даже на мелкой ловушке и, как следствие, уменьшению его длины пробега и величины импульса фототока.

Авторы выражают благодарность сотруднику Научного центра волоконной оптики при ИОФ РАН В.А.Богатыреву за полезные обсуждения и предоставление образцов световодов со встроенными электродами из никелевой проволоки. Авторы также благодарят РФФИ (гранты № 98-02-16728, 97-02-17244) и Фонд поддержки ведущих научных школ РФ (грант № 00-15-96596).

1. Bergot M.-V., Farries M.C., Fermann M.Z., Li L., Pointz-Wright L.Y., Russel P.St.J., Smithson A. *Optics Letts*, **13**, 592 (1988).
2. Hand D.P., Russell P.St.J. *Optics Letts*, **15**, 102 (1990).
3. Guiquempas Y., Martinelli G., Niay P., Bernage P., Douay M., Bayen J.F., Poignant H. *Optics Letts*, **24**, 139 (1999).
4. Rybaltovskii A.O., Zavorotny Yu.S., Chernov P.V., Bagratashvili V.N., Tsypina S.I., Kazansky P.G. *Appl.Phys.Letts*, **77**, 1578 (2000).
5. Fujiwara T., Wong D., Zhao Y., Fleming S., Poole S., Sceats M. *Electronics Letts*, **31**, 573 (1995).
6. Streltsov A.M., Ranka J.K., Gaeta A.L. *Optics Letts*, **23**, 798 (1998).
7. Dianov E.M., Kazansky P.G., Starodubov D.S., Stepanov D.Yu. *Sov.Lightwave Comms*, **2**, 269 (1992).
8. Kashyap R., Maxwell G.D., Williams D.I. *Appl.Phys.Letts*, **62**, 214 (1993).
9. Bagratashvili V.N., Tsypina S.I., Chernov P.V., Rybaltovskii A.O., Zavorotny Yu.S., Alimpiev S.S., Simanovskii Ya.O., Dong L., Russel P.St.J. *Appl.Phys.Letts*, **68**, 1616 (1996).
10. Takanashi M., Fujiwara T., Kawachia T., Ikashima A.J. *Appl.Phys.Letts*, **71**, 993 (1997).
11. Kazansky P.G., Russel P.St.J., Takabe H. *J.Lightwave Technol.*, **15**, 1 (1997).
12. Hughes R.G. *Rad. Effects*, **26**, 225 (1975).
13. Заворотный Ю.С., Рыбалтовский А.О., Чернов П.В., Баграташвили В.Н., Попов В.К., Цыпина С.И., Донг Л. *Физика и химия стекла*, **23**, 629 (1997).
14. Bagratashvili V.N., Tsypina S.I., Chernov P.V., Rybaltovskii A.O. *J.Phys.Chem.*, **99**, 6640 (1995).
15. Соммер А.Х. *Фотоэмиссионные материалы* (М., Мир, 1972).
16. Ламперт М., Марк П. *Инжекционные токи в твердых телах* (М., Мир, 1973).
17. Дианов Е.М., Стародубов Д.С., Фролов А.А., Рыбалтовский А.О. *Квантовая электроника*, **23**, 565 (1996).
18. Силинь А.Р., Трухин А.Н. *Точечные дефекты в кристаллическом и стеклообразном SiO₂* (Рига, Зинатне, 1985).