

ДВУХФОТОННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ МОЩНОГО ФЕМТОСЕКУНДНОГО ИМПУЛЬСА В СТЕКЛАХ, ДОПИРОВАННЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫМИ МИКРОКРИСТАЛЛИТАМИ, ПРИ ЭНЕРГИИ КВАНТОВ, БОЛЬШЕЙ ШИРИНЫ ЗАПРЕЩЕННОЙ ЗОНЫ

И.В.Безель, Ю.А.Матвеев, А.Г.Степанов, С.В.Чекалин, А.П.Ярцев.

Институт спектроскопии РАН

142092 Троицк, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 24 февраля 1994 г.

С помощью фемтосекундных лазерных импульсов измерено в широком интервале интенсивностей ($4 \cdot 10^8 - 3 \cdot 10^{12}$ Вт/см²) нелинейное пропускание стекол, допированных полупроводниковыми кристаллитами. Показано, что в области $10^{11} - 10^{12}$ Вт/см² поглощение образцов обусловлено в основном двухфотонным поглощением полупроводников. Получены коэффициенты двухфотонного поглощения β для стекол RG-4 и RG-8: $(3,8 \pm 1, 9) \cdot 10^{-10}$ см/Вт и $(5, 3 \pm 2, 7) \cdot 10^{-10}$ см/Вт.

Стекла, допированные полупроводниковыми кристаллитами (СДПК), давно являются предметом прикладных и фундаментальных исследований [1]. Особый интерес представляет изучение нелинейных оптических характеристик таких материалов, что связано, например, с перспективами использования СДПК в качестве эффективных быстрых оптических переключателей. Нелинейные свойства вещества, связанные с наиболее быстрым электронным откликом, могут быть исследованы при измерении двухфотонного поглощения лазерного излучения. Для того чтобы устранить сильное линейное поглощение, обычно используют лазерное излучение с энергией фотонов, меньшей ширины запрещенной зоны. Таким образом можно измерить коэффициенты двухфотонного поглощения в достаточно толстых образцах с помощью лазерных импульсов нано- и пикосекундной длительности. Исследование двухфотонного поглощения излучения с энергией фотонов, превышающей ширину запрещенной зоны (то есть в области сильного линейного поглощения), становится возможным лишь при достаточно высоких интенсивностях, когда вероятности одно- и двухфотонного поглощения оказываются соизмеримыми. При этом возникает проблема повреждения образцов лазерным импульсом, избежать которого можно, укорачивая длительность импульса. Поэтому использование фемтосекундных лазерных импульсов предпочтительно для исследования двухфотонного поглощения в области сильного линейного поглощения полупроводников.

В настоящей работе исследовалось пропускание образцов СДПК с различной шириной запрещенной зоны (RG-4 и RG-8, Jenauer Glaswerk GmbH) в зависимости от интенсивности фемтосекундных лазерных импульсов на входе в образец. Полупроводниковые кристаллиты в образцах представляли собой так называемые "тройные твердые растворы", в которых различие в ширине запрещенной зоны обусловлено различным соотношением концентраций слагающих раствор однотипных полупроводников [1]. Спектры линейного пропускания использовавшихся в эксперименте образцов СДПК RG-4 и RG-8 толщиной соответственно 0,014 и 0,013 см приведены на рис.1. Поглощение образцов в области 2эВ (энергия возбуждающего кванта) определяется

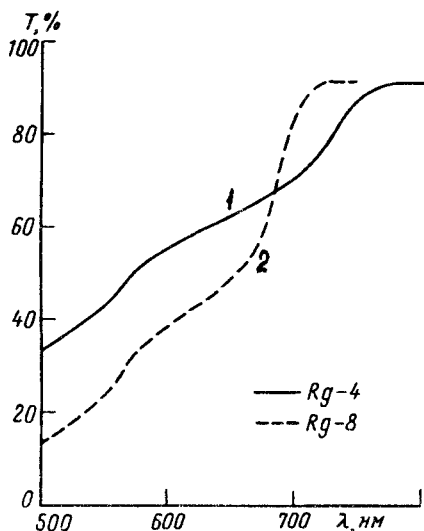


Рис.1. Спектры пропускания образцов СДПК в видимой области (кривая 1 – RG-4, кривая 2 – RG-8)

межзонными переходами в полупроводнике. Более резкий рост поглощения в RG-8 при практически одинаковой толщине образцов связан по-видимому с большей объемной долей полупроводника в этом образце. СДПК RG-8 имеет более длинноволновый край поглощения, чем RG-4, что связано с различной шириной запрещенной зоны полупроводников. Размер кристаллитов достаточно велик, поэтому в спектрах нет особенностей, связанных с размерным квантованием [1]. Пропускание образцов на длине волны возбуждения (610 нм) составляло 41% для RG-8 и 57% для RG-4, энергия возбуждающего кванта превышала энергию запрещенной зоны соответственно на 0,2 и 0,3 эВ. Относительно малое поглощение обеспечивало достаточно однородное распределение интенсивности лазерного излучения внутри образца в направлении распространения возбуждающего импульса.

Для облучения образца использовались импульсы фемтосекундного кольцевого лазера на красителе, усиленные до 20–40 мкДж в четырехкаскадном усилителе с накачкой Хе-Сl лазером [2]. Выходной импульс излучения на 610 нм с длительностью 300 фс и частотой следования 3–5 Гц фокусировался на образец в пятно с полушириной 50 мкм. Падающая на образец энергия могла ослабляться калиброванными нейтральными светофильтрами. В эксперименте измерялись падающая и прошедшая через образец энергии и вычислялось их отношение – обратное пропускание $1/T$ в зависимости от пиковой интенсивности падающего на образец излучения I_0 . Для этого использовались два фотодиода, сигналы с которых оцифровывались с помощью запоминающих осциллографов С9-8 и вводились в память компьютера. Для улучшения отношения сигнал/шум проводилась выборка значений энергии, попадающих в интервал $\pm 10\%$ от среднего. Каждая экспериментальная точка на рис.2, 3 получалась в результате усреднения данных, накопленных за 100 лазерных вспышек. Измерение оптической плотности образца в процессе такой серии позволяло зарегистрировать возникновение необратимых изменений. При определении I_0 считалось, что пространственное распределение излучения близко к гауссову, а временная форма описывается квадратом гиперболического секанса.

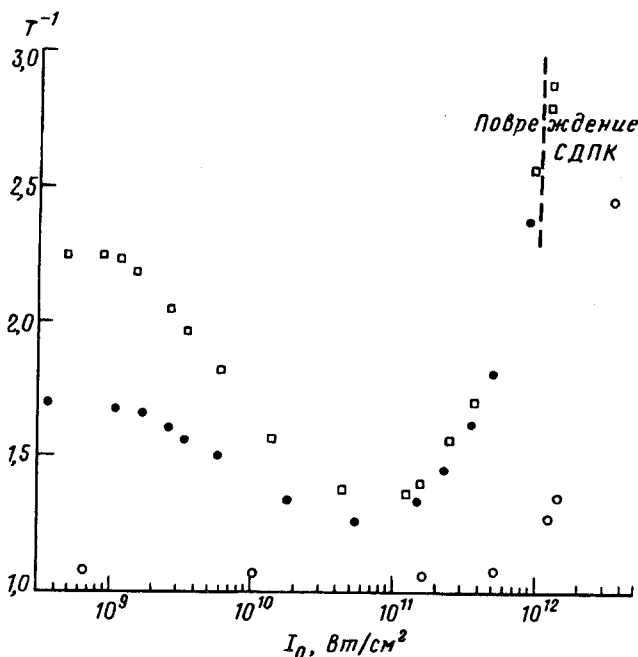


Рис.2. Зависимость обратного пропускания образцов от I_0 : ● - RG-4, □ - RG-8, ○ - стекло К-8 (логарифмический масштаб I_0)

Как видно из рис.2, зависимость пропускания образцов от I_0 немонотонна. При увеличении I_0 от 10^9 до $5 \cdot 10^{10} \text{ Wt/cm}^2$ пропускание образца увеличивается (известный эффект просветления). Дальнейший рост интенсивности от 10^{11} до 10^{12} Wt/cm^2 приводит к уменьшению пропускания. Импульсы с I_0 выше 10^{12} Wt/cm^2 вызывают необратимые изменения в образцах. При меньших интенсивностях необратимых или накапливающихся изменений не наблюдалось.

Увеличение пропускания при $I_0 = 10^9 - 5 \cdot 10^{10} \text{ Wt/cm}^2$ связано с заполнением состояний на уровне возбуждения в полупроводнике. Появляющееся при более высоких I_0 поглощение дает близкую к линейной зависимости $1/T$ от I_0 (рис.3). Причиной такой зависимости может быть как двухфотонное, так и двухступенчатое поглощение. В последнем случае это могло бы быть однофотонное межзонное поглощение на первой ступени и, например, поглощение фотовозбужденными носителями и ловушками (дефектами, примесями), на которые за время импульса успевает срелаксировать часть энергии возбужденных носителей [3], на второй. Насыщение одной из ступеней приводит к тому, что суммарное поглощение определяется в основном линейным поглощением ненасыщенной ступени. Как видно из рис.2, межзонное поглощение в обоих образцах СДПК насыщается при интенсивностях $\leq 10^{11} \text{ Wt/cm}^2$. Поэтому двухступенчатое поглощение не оказывает существенного влияния на рост поглощения, наблюдаемый в диапазоне $I_0 = 10^{11} - 10^{12} \text{ Wt/cm}^2$.

Рост поглощения при высоких интенсивностях не связан также с эффектами матрицы. Исследование нелинейного пропускания пластинки из стекла К-8 показало, что при изменении I_0 от 10^9 до $5 \cdot 10^{11} \text{ Wt/cm}^2$ ее пропускание определяется с экспериментальной точностью френелевским отражением. Заметное уменьшение пропускания наблюдается только при $I_0 \geq 10^{12} \text{ Wt/cm}^2$ (рис.2). Кроме того, коэффициент поглощения матрицы не описывается линейной функцией I_0 , а имеет более сложный вид: $\kappa \approx I_0^k$, $k > 2$ (рис.3).

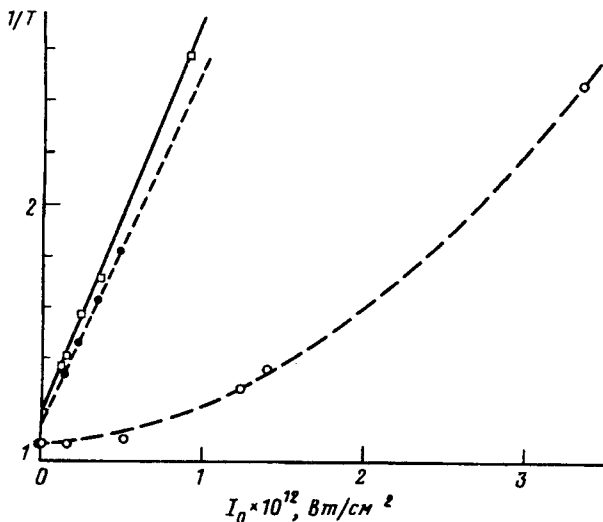


Рис.3. Зависимость обратного пропускания образцов от I_0 (линейный масштаб I_0). Обозначения те же, что на рис.2. Для ориентировки на графике приведены линейные зависимости для СДПК и квадратичная для стекла К-8

В диапазоне интенсивностей $I_0 = 10^{11} - 10^{12}$ Вт/см² коэффициент нелинейного поглощения κ можно записать в виде

$$\kappa = \alpha + \beta I, \quad (1)$$

где β – коэффициент двухфотонного поглощения, а коэффициент α отражает наличие поглощения, не меняющегося в этой области интенсивности (см. ниже). Тогда отношение пиковых интенсивностей падающего и прошедшего через образец излучений имеет вид [4]

$$I_0/I = (i - R)^{-2} e^{\alpha l} + \beta(e^{\alpha l} - 1)I_0/\alpha(i - R), \quad (2)$$

где l – толщина образца, R – коэффициент отражения. Численная аппроксимация экспериментальных зависимостей $1/T$ выражением (2) с учетом временной формы и пространственного распределения интенсивности падающего импульса дает значения коэффициентов β (в см/Вт), равные $(3,8 \pm 1,9) \cdot 10^{-10}$ для RG-4 и $(5,3 \pm 2,7) \cdot 10^{-10}$ для RG-8. Экстраполяция этих значений с учетом объемной доли полупроводника в СДПК дает соответственно значения $\beta = (3,8 \pm 1,9) \cdot 10^{-7}$ см/Вт и $\beta = (1,8 \pm 0,9) \cdot 10^{-7}$ см/Вт для объемных полупроводников. Погрешность определения величины β связана в основном с точностью измерения I_0 . При численной аппроксимации минимальное среднеквадратичное отклонение от экспериментальных зависимостей достигалось при $0 \leq \alpha \leq 2$ для RG-4 и $0 \leq \alpha \leq 3$ для RG-8 (значения α даны в см⁻¹). Приведенные величины α находятся в хорошем соответствии с сечениями поглощения свободных носителей в СДПК [5,6].

Таким образом, можно заключить, что двухфотонное поглощение в полупроводниках является основным механизмом поглощения СДПК, возбуждаемых в области межзонного поглощения импульсами с интенсивностью $10^{11} - 10^{12}$ Вт/см².

Отличие в приведенных к объемному полупроводнику значениях β для разных СДПК можно в соответствии с [1] интерпретировать как спектральную зависимость двухфотонного поглощения. Действительно плотность состояний

в зонах, соответствующая двухфотонному поглощению с сохранением квазиимпульса, выше в RG-4 (меньшая ширина запрещенной зоны). Сравнение полученных нами коэффициентов β со значениями $2 \cdot 10^{-8}$ см/Вт, измеренными для соответствующих объемных полупроводников при энергии кванта, меньшей ширины запрещенной зоны [7-9], также демонстрирует увеличение поглощения при двухфотонном возбуждении вблизи края зоны. Кроме того, здесь может проявляться эффект увеличения вероятности двухфотонного перехода при наличии промежуточного резонанса для одного фотона.

Авторы выражают благодарность Ю.Е.Лозовику и В.М.Фарзтинову за полезные обсуждения. Работа частично поддержана грантом "Физика твердотельных наноструктур" N_249Ф и министерством обороны США.

-
1. N.F.Borelli, D.W.Hall, H.J.Holland, and D.W.Smith, *J. Appl. Phys.* **61**, 5399 (1987).
 2. Ю.А.Матвеец, А.Г.Степанов, С.В.Чекалин, А.П.Ярцев, *Известия АН СССР, сер.физ.* **54**, 1520 (1990).
 3. M.C.Nuss, W.Zinth, and W.Kaiser, *Appl. Phys. Lett.* **49**, 1717 (1986).
 4. Н.Г.Басов, А.З.Грасюк, И.Г.Зубарев и др., *ЖЭТФ* **50**, 551 (1966).
 5. M.Cull, J.L.Coutaz, G.Manneberg, and V.Grivickas, *Appl. Phys. Lett.* **54**, 1830 (1989).
 6. K.W.DeLong, A.Gabel, C.T.Seaton, and G.I.Stegeman, *J. Opt. Soc. Am.* **B6**, 1306 (1989).
 7. В.В.Арсеньев, В.С.Днепровский, Д.Н.Клышко, А.Н.Пенин, *ЖЭТФ* **56**, 760 (1969).
 8. A.F.Stewart and M.Bass, *Appl. Phys. Lett.* **37**, 1040 (1980).
 9. A.Penzkofer, M.Schaffner, and X.Bao, *Springer Series in Chemical Physics*, **53**, *Ultrafast Phenomena VIII*, Ed. С.В.Harris, Е.Р.Ippen, G.A.Mourou, А.Н.Zewail, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1990, p.160.